

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SANTA CATARINA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E ENGENHARIA DE MATERIAIS

**REDES NEURAIIS APLICADAS À PREDIÇÃO DE PROPRIEDADES DE CERÂMICAS
MULTICOMPONENTES**

DISSERTAÇÃO SUBMETIDA À UNIVERSIDADE FEDERAL DE SANTA CATARINA
PARA OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE EM CIÊNCIA E ENGENHARIA DE
MATERIAIS

FELIPE AUGUSTO CORBELLINI DE SOUZA

Orientador: Dachamir Hotza
Coorientador: Ricardo A. F. Machado

FLORIANÓPOLIS, MAIO DE 2008

**REDES NEURAIS APLICADAS À PREDIÇÃO DE PROPRIEDADES DE CERÂMICAS
MULTICOMPONENTES**

FELIPE AUGUSTO CORBELLINI DE SOUZA

**ESTA DISSERTAÇÃO FOI JULGADA PARA OBTENÇÃO DO TÍTULO DE MESTRE EM
CIÊNCIA E ENGENHARIA DE MATERIAIS**

**ESPECIALIDADE CIÊNCIA E ENGENHARIA DE MATERIAIS E APROVADA EM SUA
FORMA FINAL PELO PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E
ENGENHARIA DE MATERIAIS**

Prof. Dr. Dachamir Hotza
Orientador

Prof. Dr. Ricardo A. F. Machado
Coorientador

Prof^a. Dr^a. Ana Maria Maliska
Coordenadora do programa

BANCA EXAMINADORA

Prof. Dr. Alexandre Lago
Presidente

Prof. Dr. Pedro Alberto Barbeta

Prof. Dr. Carlos Renato Rambo

AGRADECIMENTOS

Ao orientador Professor Dachamir Hotza, pela disposição e apoio para realização deste trabalho.

Ao coorientador Professor Ricardo Machado, pela disposição, assistência e auxílio prestado nos momentos necessários.

À empresa T-cota Engenharia de Materiais Cerâmicos por disponibilizar o ambiente e contextualização para realização do trabalho, além da troca de conhecimento praticada. Em especial, ao diretor técnico Nilson Schwartz da Silva, pela direção e dedicado apoio às atividades desenvolvidas.

À CAPES, pela bolsa de Mestrado concedida durante o período de desenvolvimento do trabalho.

SUMÁRIO

| | |
|--|----|
| LISTA DE FIGURAS | vi |
| LISTA DE TABELAS | ix |
| LISTA DE ABREVIATURAS, SIGLAS E SÍMBOLOS | xi |
| RESUMO..... | 1 |
| ABSTRACT | 2 |
| 1 INTRODUÇÃO | 3 |
| 1.1 Objetivos | 4 |
| 2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA..... | 5 |
| 2.1 Cerâmicas multicomponentes..... | 5 |
| 2.2 Porcelana: composições e propriedades | 8 |
| 2.2.1 Porcelana elétrica | 9 |
| 2.2.2 Porcelanato | 10 |
| 2.3 Projeto e análise de experimentos..... | 12 |
| 2.4 Redes neurais artificiais..... | 18 |
| 2.4.1 Aprendizagem de Redes Neurais Artificiais..... | 22 |
| 3. MATERIAIS E MÉTODOS..... | 25 |
| 3.1 Seleção e caracterização das matérias-primas | 26 |
| 3.2 Planejamento experimental..... | 28 |
| 3.2.1 Porcelana para isoladores elétricos..... | 28 |
| 3.2.2 Porcelanato | 30 |
| 3.3 Processamento cerâmico..... | 31 |
| 3.3.1 Porcelana para isoladores elétricos..... | 31 |
| 3.3.2 Porcelanato | 33 |
| 3.4 Determinação das propriedades | 33 |
| 3.5 Análise e predição de dados..... | 34 |
| 4. RESULTADOS E DISCUSSÃO..... | 37 |
| 4.1 Porcelana para isoladores elétricos | 37 |
| 4.1.1 Caracterização das matérias-primas | 37 |
| 4.1.2 Caracterização das misturas | 40 |

| | |
|---|----|
| 4.1.3 Treinamento das redes neurais artificiais | 43 |
| 4.1.4 Ajuste Polinomial | 50 |
| 4.1.5 Verificação da capacidade preditiva dos modelos | 52 |
| 4.2 Porcelanato | 58 |
| 4.2.1 Caracterização das matérias-primas | 58 |
| 4.2.2 Caracterização das misturas de porcelanato | 61 |
| 4.2.3 Treinamento das redes neurais artificiais | 65 |
| 4.2.4 Ajuste Linear | 74 |
| 4.2.5 Verificação da capacidade preditiva dos modelos | 75 |
| 5. CONCLUSÕES | 82 |
| 6. SUGESTÕES | 83 |
| 7. REFERÊNCIAS | 84 |

LISTA DE FIGURAS

| | |
|--|----|
| Figura 1 Composições de cerâmicas triaxiais comerciais ^[26] | 5 |
| Figura 2 Composições triaxiais sobre um diagrama de fases sílica-leucita-mulita ^[27] | 6 |
| Figura 3 Composição de porcelanato no diagrama sílica-caulinita-quartzo ^[43] | 11 |
| Figura 4 Modelo genérico de um processo ou sistema ^[44] | 13 |
| Figura 5 Experimento fatorial de dois fatores. Dois níveis para cada fator. ^[44] | 14 |
| Figura 6 Simplex com três fatores ou componentes ^[45] | 14 |
| Figura 7 ^[45] – a) Modelo linear de valor médio constante. b) Modelo linear com inclinação tendendo a aproximação dos pontos. c) Erros ao representar os dados pelo modelo linear constante. d) Erros ao representar os dados pelo modelo linear inclinado. | 16 |
| Figura 8 Representação do Neurônio de McCulloch e Pitts ^[48] | 19 |
| Figura 9 Modelo de um neurônio artificial ^[49] | 20 |
| Figura 10 Funções de ativação. (a) Limiar, (b) Linear por partes e (c) Sigmóide ^[49] | 21 |
| Figura 11 Ilustração de uma rede neural completamente conectada ^[49] | 22 |
| Figura 12 Obtenção do erro..... | 23 |
| Figura 13 Fluxograma das etapas do trabalho. | 25 |
| Figura 14 Diagrama de gresificação para mistura 1. | 42 |
| Figura 15 EMQ em função do número de neurônios. Treinamento com cinco iterações. . | 44 |
| Figura 16 Neurônios e e_p para densidade aparente a seco. $\bar{e}_p = 1,2\%$ com 60 neurônios. | 45 |
| Figura 17 Neurônios e e_p para resistência mecânica a flexão pós-queima. $\bar{e}_p = 14,2\%$ com 70 neurônios. | 46 |
| Figura 18 Neurônios e e_p para flecha de deformação pirolástica. $\bar{e}_p = 12,0\%$ com 60 neurônios. | 46 |
| Figura 19 Neurônios e e_p para retração linear a 1220°C. $\bar{e}_p = 9,6\%$ com 30 neurônios. ... | 47 |
| Figura 20 Neurônios e e_p para retração linear a 1240°C. $\bar{e}_p = 6,1\%$ com 40 neurônios..... | 47 |
| Figura 21 Neurônios e e_p para absorção de água a 1220°C. $\bar{e}_p = 32,3\%$ com 50 neurônios. | 48 |
| Figura 22 Neurônios e e_p para absorção de água a 1240°C. $\bar{e}_p = 19,4\%$ com 50 neurônios. | 48 |

| | |
|--|----|
| Figura 23 Neurônios e e_p para densidade aparente pós-queima a 1220°C. $\bar{e}_p = 2,0\%$ com 40 neurônios. | 49 |
| Figura 24 Neurônios e e_p para densidade aparente pós-queima a 1240°C. $\bar{e}_p = 1,5\%$ com 50 neurônios. | 49 |
| Figura 25 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a seco. | 53 |
| Figura 26 Verificação da capacidade preditiva de resistência mecânica a flexão a seco.. | 53 |
| Figura 27 Verificação da capacidade preditiva de flecha de deformação pirolástica..... | 54 |
| Figura 28 Verificação da capacidade preditiva de retração linear a 1220°C. | 54 |
| Figura 29 Verificação da capacidade preditiva de retração linear a 1240°C. | 55 |
| Figura 30 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água a 1220°C..... | 55 |
| Figura 31 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água a 1240°C..... | 56 |
| Figura 32 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a 1220°C..... | 56 |
| Figura 33 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a 1240°C..... | 57 |
| Figura 34 Diagrama de gresificação. Mistura 1 do sistema porcelanato. | 64 |
| Figura 35 Comportamento do EMQ em função do número de neurônios. Cinco iterações. | 66 |
| Figura 36 Neurônios e e_p para densidade aparente a seco. $\bar{e}_p = 0,2\%$ com 60 neurônios. | 67 |
| Figura 37 Neurônios e e_p para resistência mecânica a flexão a seco. $\bar{e}_p = 17,6\%$ com 70 neurônios. | 68 |
| Figura 38 Neurônios e e_p para flecha de deformação pirolástica. $\bar{e}_p = 7,1\%$ com 90 neurônios. | 68 |
| Figura 39 Neurônios e e_p para para retração linear a 1100°C. $\bar{e}_p = 7,5\%$ com 60 neurônios. | 69 |
| Figura 40 Neurônios e e_p para retração linear a 1140°C. $\bar{e}_p = 6,4\%$ com 50 neurônios.... | 69 |
| Figura 41 Neurônios e e_p para retração linear a 1180°C. $\bar{e}_p = 2,5\%$ com 70 neurônios.... | 70 |
| Figura 42 Neurônios e e_p para absorção de água a 1100°C. $\bar{e}_p = 2,5\%$ com 60 neurônios. | 70 |

| | |
|--|----|
| Figura 43 Neurônios e e_p para absorção de água a 1140°C. $\bar{e}_p = 6,0\%$ com 50 neurônios. | 71 |
| Figura 44 Neurônios e e_p para absorção de água a 1180°C. $\bar{e}_p = 12,2\%$ com 40 neurônios. | 71 |
| Figura 45 Neurônios e e_p para densidade aparente a 1100°C. $\bar{e}_p = 0,7\%$ com 50 neurônios. | 72 |
| Figura 46 Neurônios e e_p para densidade aparente a 1140°C. $\bar{e}_p = 1,1\%$ com 70 neurônios. | 72 |
| Figura 47 Neurônios e e_p para densidade aparente a 1180°C. $\bar{e}_p = 1,7\%$ com 70 neurônios. | 73 |
| Figura 48 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a seco. | 75 |
| Figura 49 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a seco. | 76 |
| Figura 50 Verificação da capacidade preditiva de flecha de deformação pirolástica. | 76 |
| Figura 51 Verificação da capacidade preditiva de retração linear de queima a 1100°C. | 77 |
| Figura 52 Verificação da capacidade preditiva de retração linear de queima a 1140°C. | 77 |
| Figura 53 Verificação da capacidade preditiva de retração linear de queima a 1180°C. | 78 |
| Figura 54 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água pós-queima a 1100°C. | 78 |
| Figura 55 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água pós-queima a 1140°C. | 79 |
| Figura 56 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água pós-queima a 1180°C. | 79 |
| Figura 57 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente pós-queima a 1100°C. | 80 |
| Figura 58 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente pós-queima a 1140°C. | 80 |
| Figura 59 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente pós-queima a 1160°C. | 81 |

LISTA DE TABELAS

| | |
|--|----|
| Tabela 1 Feldspatos comuns para industria cerâmica ^[28] | 6 |
| Tabela 3 Principais propriedades de porcelanas elétricas ^[38] | 10 |
| Tabela 4 Composições típicas de porcelanato. Valores expressos em % massa. | 11 |
| Tabela 5 Principais propriedades de porcelanato ^[40] | 11 |
| Tabela 6 Materiais empregados para os sistemas..... | 26 |
| Tabela 7 Parâmetros de processamento para caracterização das matérias-primas. | 27 |
| Tabela 8 Limites do espaço amostral. | 28 |
| Tabela 9 Formulações das misturas para o sistema de porcelana elétrica. | 29 |
| Tabela 10 Limites do espaço amostral. | 30 |
| Tabela 11 Formulações para o sistema de porcelanato. | 31 |
| Tabela 12 Parâmetros de processamento para misturas de porcelana..... | 32 |
| Tabela 13 Parâmetros de processamento para misturas de porcelanato..... | 33 |
| Tabela 14 Análise química das matérias-primas para porcelana elétrica. | 37 |
| Tabela 15 Principais propriedades físicas das matérias-primas para porcelana elétrica...38 | |
| Tabela 16 Resultados das misturas processadas para porcelana elétrica. | 40 |
| Tabela 18 Formulações de verificação. | 45 |
| Tabela 19 Coeficientes de determinação e significância dos modelos lineares para propriedades de porcelana elétrica. | 51 |
| Tabela 20 Coeficientes de determinação e significância dos modelos de segunda ordem para propriedades de porcelana elétrica. | 51 |
| Tabela 20 Análise química das matérias-primas para porcelanato..... | 58 |
| Tabela 21 Principais propriedades físicas das matérias-primas de porcelanato..... | 59 |
| Tabela 22 Resultado para as misturas processadas de porcelanato..... | 61 |
| Tabela 23 Retração linear de queima em função da temperatura de queima de porcelanato. | 62 |
| Tabela 24 Absorção de água em função da temperatura de queima de porcelanato..... | 63 |
| Tabela 25 Densidade aparente pós-queima em função da temperatura de queima..... | 63 |
| Tabela 26 Formulações de verificação para o sistema porcelanato. | 67 |

| | |
|--|----|
| Tabela 27 Coeficientes de determinação e significância dos modelos lineares para propriedades de porcelana elétrica. | 74 |
| Tabela 28 Coeficientes de determinação e significância dos modelos lineares para propriedades de porcelana elétrica. | 74 |

LISTA DE ABREVIATURAS, SIGLAS E SÍMBOLOS

| | |
|----------|--|
| Dap | Densidade aparente |
| P | Nível de significância descrito pela amostra |
| RL | Retração linear |
| RNA | Rede neural artificial |
| RMF | Resistência mecânica a flexão |
| W_{kj} | Peso sináptico de um neurônio artificial k |
| X | Fatores controláveis de um sistema |
| X_j | Entrada de uma rede neural |
| Z | Fatores incontroláveis de um sistema |
| Y | Saídas de um sistema |

Letras gregas

| | |
|----------|---|
| Φ | Função de ativação de um neurônio artificial |
| v_k | Potencial de ativação de um neurônio artificial k |
| Σ | Junção aditiva |

RESUMO

Aplicou-se a metodologia de delineamento de misturas combinado com redes neurais em dois sistemas cerâmicos multicomponentes: porcelana elétrica e porcelanato, contendo número de matérias-primas similar ao utilizado nas indústrias de fabricação de isoladores elétricos e de revestimentos cerâmicos, respectivamente.

As matérias-primas industriais disponíveis foram caracterizadas quanto à composição química e propriedades físicas, as quais foram utilizadas para o delineamento de misturas. Após processamento e obtenção de propriedades das misturas planejadas, em laboratório preparado para reprodução de condições industriais, efetuou-se análise pelos métodos de regressão polinomial e treinamento de redes neurais artificiais. A capacidade preditiva dos dois métodos de análise foi avaliada com experimentos de verificação a partir de misturas não contidas no planejamento inicial.

No sistema “porcelana elétrica” modelos polinomiais de segunda ordem ajustaram-se para relação entre teor de matérias-primas e propriedades finais das misturas, havendo melhor capacidade preditiva das redes neurais em comparação aos modelos resultantes da regressão polinomial. No sistema “porcelanato”, modelos lineares ajustaram-se bem para relação entre variáveis de entrada e saída, assim como as redes neurais, as quais apresentam menor desvio padrão ao prever propriedades a partir de entradas não contidas no planejamento.

De maneira geral, as RNAs “aprendem” a relação entre o teor das matérias-primas e as propriedades finais das misturas cerâmicas tradicionais, independente do grau da função que a descreve e do número de matérias-primas envolvidas, podendo ser utilizadas para prever propriedades de misturas não contidas no treinamento.

ABSTRACT

Artificial neural networks were applied to the prediction of properties of two multicomponent ceramic systems: electrical porcelain and porcelain stoneware. Design of mixture experiments was carried out to provide data for artificial neural networks, based on the number of raw materials commonly used in ceramic industries of electrical insulators and floor tiles, respectively.

Physical and chemical properties were determined for available raw materials, which were used in the design of mixture experiments. Designed mixtures were processed in laboratory according to an industrial approach. After reaching the properties of the designed ceramic mixtures, data analyses were performed by linear regression and artificial neural networks. The predictive ability of both data analysis methods was evaluated by verification experiments.

In the electrical porcelain system, second order polynomial model fitted the relation between the raw materials content and final properties of mixtures. Artificial neural networks were successfully used for prediction of properties, compared with polynomial regression. In the floor tile system, linearity was achieved for the relation between raw materials content and final properties. Artificial neural networks were successful too and provided lower standard deviation compared to the fitted linear model.

Artificial neural networks “learn” the relationship between raw materials content and ceramic mixture properties, independently of the number of raw materials used and the mathematical model that describes this relationship.

1 INTRODUÇÃO

O desenvolvimento de cerâmicas multicomponentes é uma atividade que visa a atender requisitos de projeto de bens de consumo e componentes de engenharia em geral, sob condições de processo determinadas pelos recursos industriais disponíveis. Tal desenvolvimento pode ser efetuado através de séries de experimentos que possuem como entrada diversas formulações de misturas de matérias-primas cerâmicas naturais e, como saída, são observadas as propriedades das misturas, testadas frente a um processamento que configura a condição de contorno para os experimentos.

Atualmente a metodologia de desenvolvimento de misturas cerâmicas é realizada no meio industrial com base na simples modificações na formulação de composição e observação das conseqüências durante um determinado período de processo produtivo. Tal procedimento pode ser chamado de “causa e efeito” ou “tentativa e erro”. Em centros de pesquisa e desenvolvimento, tem sido utilizada a técnica de delineamento experimental e análise por regressão polinomial ^[1-4] para se desenvolver e otimizar propriedades. O sucesso do desenvolvimento atual é devido a estas técnicas, porém encontram-se dificuldades de ajuste em casos mais próximos à realidade industrial, onde se trabalham com um número elevado de matérias-primas e quando as relações com as propriedades de estudo não são lineares. Esta dificuldade concentra-se na grande quantidade de experimentos necessários em delineamentos de experimentos onde ocorrem relações não lineares, pois é obrigatório um conjunto de dados condizente com o sistema de equações a ser resolvido neste método, desta forma consumindo períodos prolongados em comparação ao tempo disponível para desenvolvimento industrial.

Em uma rede neural artificial (RNA) ocorre ajuste dos coeficientes de um polinômio de muitos termos por um algoritmo de treinamento. Trabalhos que relatam aplicações para redes neurais artificiais e materiais metálicos^[5-11], poliméricos^[12-14], compósitos^[15-18] e cerâmicos ^[19-24] têm mostrado um caminho promissor para o desenvolvimento de novos materiais e para constituição de uma ferramenta utilizada para efetuar predição de comportamento.

O processo de construção de uma Rede Neural Artificial (RNA) pode ser efetuado via software de programação computacional. O conjunto de dados resultantes de experimentos pode ser dividido em dois grupos:

- Treino: primeiros dados apresentados à rede para que ocorra “aprendizagem” da relação entre teor de matérias-primas e propriedades das misturas;
- Validação: verificação da capacidade preditiva da rede.

Uma rede treinada corretamente é capaz de generalizar a relação entre as variáveis apresentadas possibilitando sua utilização para previsão de saídas a partir de entradas não contidas no processo de treinamento da rede.

É necessário que haja dados suficientes para se efetuar o processo de criação de uma rede, porém ainda não se tem regras bem definidas para quantificação deste número de dados. Um método de análise e predição de dados pode ser empregado em nível de desenvolvimento industrial caso as respostas sejam rápidas, precisas e econômicas. A partir deste pressuposto, pode-se utilizar a técnica de projeto de experimentos para organizar os dados de entrada de forma rápida e econômica e efetuar a análise e predição com precisão através de RNAs, caso a generalização corresponda a baixo erro de previsão.

1.1 Objetivos

O objetivo geral deste trabalho é obter redes neurais artificiais treinadas para experimentos de mistura projetados, bem como avaliar seu desempenho para predição de propriedades de cerâmicas multicomponentes de sistemas diferentes, obtidas a partir de um número de matérias-primas semelhante ao que se utiliza atualmente na indústria brasileira.

É objetivo específicos do trabalho:

- avaliar a capacidade preditiva através de experimentos de verificação da resposta das redes adequadas a cerâmicas multicomponentes, especificamente a formulações de isoladores elétricos e de porcelanato.

2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 Cerâmicas multicomponentes

As cerâmicas multicomponentes mais conhecidas são cerâmicas triaxiais, eleitas para serem objeto de pesquisa deste trabalho, são materiais compostos principalmente pela mistura inicial de materiais particulados de três grupos característicos ^[25]: fundente, plástico e carga (estrutural, inerte ou refratária) conforme ilustrado na Figura 1 ^[26], onde a argila é classificada como plástica, a sílica como estrutural e o feldspato como fundente. Grande parte das cerâmicas triaxiais comercialmente disponíveis estão representadas neste campo composicional.

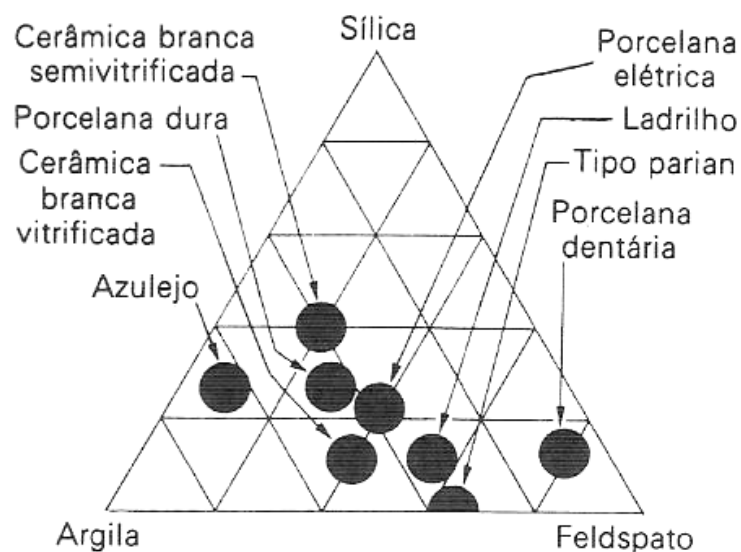


Figura 1 Composições de cerâmicas triaxiais comerciais ^[26].

Outra representação composicional de cerâmicas multicomponentes, comercialmente disponíveis, pode ser observada na Figura 2 ^[27], a qual apresenta também algumas fases cristalinas comumente encontradas nos corpos obtidos a partir destes materiais.

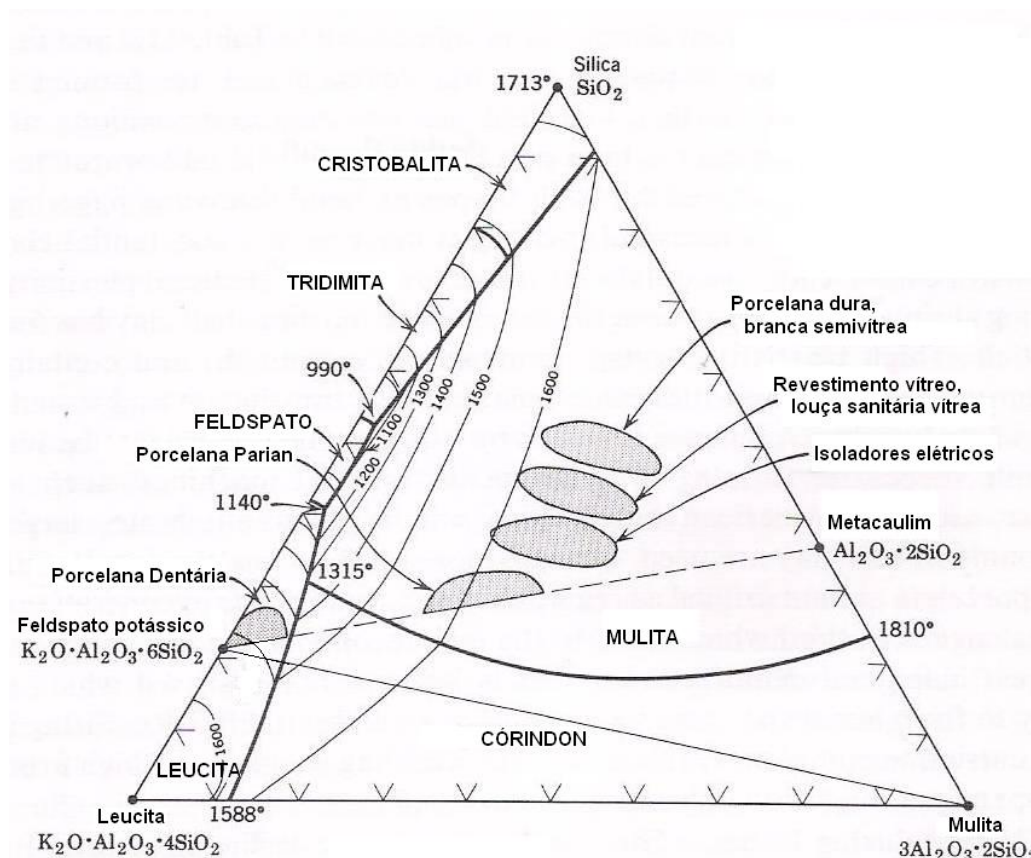


Figura 2 Composições triaxiais sobre um diagrama de fases sílica-leucita-mulita [27].

A obtenção de produtos cerâmicos multicomponentes deve passar obrigatoriamente por etapas de conformação e tratamento térmico, onde os materiais fundentes conferem fluxo viscoso durante o processamento térmico da mistura, conseqüentemente proporcionando densificação e eliminação parcial de porosidade. Fundentes empregados comumente no meio industrial são os feldspatos rochosos, definidos como minerais naturais compostos em sua maioria por aluminossilicatos de potássio, sódio e cálcio, servindo de fonte de SiO_2 , Al_2O_3 e óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos para as misturas cerâmicas. A denominação e fórmula composicional dos feldspatos mais comuns são apresentadas na Tabela 1.

Tabela 1 Feldspatos comuns para indústria cerâmica [28].

| Denominação | Fórmula |
|-------------|---|
| Ortoclásio | $\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2$ |
| Albita | $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2$ |
| Anortita | $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ |

Os materiais refratários, ou estruturais, conferem principalmente estabilidade dimensional ao corpo formado pela mistura, durante todo o processamento, além de serem os principais contribuintes para manter elevadas as propriedades mecânicas finais, sendo exemplo destes materiais a alumina (óxido de alumínio - Al_2O_3) e a sílica (óxido de silício - SiO_2).

Finalmente, os materiais plásticos conferem “plasticidade”, ou seja, a capacidade de deformação permanente induzida por aplicação de tensão mecânica a um corpo sem que ocorra ruptura ^[29,25], durante etapas de conformação da mistura. Os materiais plásticos naturais mais comuns são as argilas. O termo argila refere-se a um material natural de textura terrosa e baixa granulometria, que desenvolve plasticidade quando misturado com uma quantidade limitada de água ^[30]. Tal plasticidade deve-se ao fato dos minerais argilosos serem organizados em camadas em níveis microscópicos, as quais são susceptíveis ao movimento relativo induzido por tensão mecânica quando há lubrificação aquosa entre elas ^[30].

Ainda as argilas podem ser classificadas quanto ao principal argilomineral em ^[29,30,31].

- Argilas Cauliniticas: compostas principalmente pelo mineral caulinita ($\text{Al}_2(\text{Si}_2\text{O}_5)(\text{OH})_4$), misturado ao quartzo, podendo haver compostos orgânicos e baixos teores de óxidos de Fe. Apresenta baixa fusibilidade e baixa plasticidade em comparação às outras classes de argila;
- Argilas Ilíticas: Compostas principalmente pelo mineral ilita ($\text{Al}_{2-x}\text{Mg}_x\text{K}_{1-x-y}(\text{Si}_{1,5-y}\text{Al}_{0,5+y}\text{O}_5)_2(\text{OH})_2$) misturado ao quartzo, podendo haver compostos orgânicos e baixos teores de óxidos de Fe. Apresenta média fusibilidade e média plasticidade em comparação às outras classes de argila;
- Bentonitas: compostas principalmente pelo mineral montmorilonita ($\text{Al}_{1,67}\text{Na}_{0,33}\text{Mg}_{0,33}(\text{Si}_2\text{O}_5)_2(\text{OH})_2$) misturado ao quartzo, podendo haver compostos orgânicos e baixos teores de óxidos de Fe. Apresenta elevada fusibilidade e elevada plasticidade em comparação às outras classes de argila.

Podem-se classificar as cerâmicas multicomponentes de acordo com o processo de conformação plástica ao qual são submetidas. Dentre estes processos vale ressaltar:

- Prensagem uniaxial: A mistura granulada é acondicionada em uma cavidade e submetida à compactação uniaxial por intermédio de punções. A indústria de pavimento e revestimento cerâmico utiliza este processo de conformação para fabricação de seus produtos. Pavimento e revestimento cerâmicos são peças constituídas normalmente por um suporte, de natureza argilosa e porosidade variada, com ou sem recobrimento de natureza essencialmente vítrea ^[32]. Apresentam aplicações no recobrimento de pisos e paredes, interiores ou exteriores.
- Extrusão: A conformação de corpos cerâmicos por extrusão é definida pela indução da passagem de um material plástico coesivo (pasta cerâmica) através de um orifício de uma matriz rígida ^[29]. A indústria cerâmica de louças de mesa e de isoladores elétricos utiliza este processo de fabricação para obtenção de seus produtos, como etapa intermediária ou final de conformação.
- Colagem: também conhecido por “slip casting”, este processo baseia-se no preenchimento de moldes porosos pela mistura em suspensão geralmente aquosa ^[36]. A indústria de louças sanitárias faz uso deste processo de conformação para obtenção de seus produtos.

2.2 Porcelana: composições e propriedades

O termo “porcelana” pode ser definido como um tipo de cerâmica vítrea branca. Na Inglaterra o termo é definido a partir da composição: um corpo vítreo branco formado a partir de uma massa feldspática (origem na porcelana de mesa da Europa ocidental contendo 50% de caulim, 25% de quartzo e 25% de feldspato). Nos Estados Unidos o

termo é definido a partir da aplicação: um corpo branco cerâmico vítreo esmaltado ou não, de uso técnico, p.ex. porcelana elétrica e porcelana química. ^[28]

O termo “porcelana” pode incluir em sua definição a propriedade de porosidade aberta nula, ou absorção de água nula, ou permeabilidade nula, conforme encontrado em normas técnicas para produtos porcelânicos ^[38, 39, 40].

Duas porcelanas foram eleitas para serem objeto de estudo neste trabalho: porcelana para isoladores elétricos e porcelana para pavimento do tipo porcelanato. As quais são apresentadas de acordo com a definição, composição e propriedades.

2.2.1 Porcelana elétrica

Porcelana para isoladores elétricos, ou simplesmente “porcelana elétrica”, é um termo designado para representar uma porcelana fabricada para aplicações onde se requer principalmente isolamento elétrico ^[28]. Também pode ser definida como um material inorgânico, conformado antes da queima, o qual possui como principais constituintes silicatos policristalinos, alumino-silicatos, titanatos, ou óxidos ^[38].

As porcelanas elétricas são classificadas quanto à composição e propriedades mecânicas em três grupos ^[38]:

- C110 – Porcelana silicosa.
- C120 – Porcelana aluminosa de resistência padrão;
- C130 – Porcelana aluminosa de alta resistência;

Nas Tabelas 2 e 3 apresentam-se composições típicas e propriedades para estas porcelanas, respectivamente. Observa-se uma relação diretamente proporcional entre teor de alumina e resistência mecânica, a qual é uma propriedade que merece atenção em detrimento às solicitações mecânicas impostas a grupos de isoladores elétricos especiais para alta tensão ^[34,41] (> 138 kV).

Tabela 2 Composições típicas de porcelanas elétricas. Valores expressos em % massa.

| Componente | C100 | | C120 | C130 |
|------------|--------------------|--------------------|-------------------------|------|
| Quartzo | 30 ^[28] | 20 ^[26] | - | |
| Argila | 18 ^[28] | 25 ^[26] | 10 – 20 ^[42] | |
| Caulim | 22 ^[28] | 21 ^[26] | 10 - 20 ^[42] | |
| Granito | 15 ^[28] | - | - | |
| Feldspato | 15 ^[28] | 34 ^[26] | 15 - 25 ^[42] | |
| Alumina | - | - | 30 - 40 ^[42] | |

Tabela 3 Principais propriedades de porcelanas elétricas ^[38].

| Propriedade | C100 | C120 | C130 |
|--------------------------------|------|------|------|
| Porosidade aberta (%vol.) | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| Densidade (g/cm ³) | 2,2 | 2,3 | 2,5 |
| Resistência a flexão (MPa) | 50 | 90 | 140 |
| Resistência elétrica (kV/mm) | 20 | 20 | 20 |

2.2.2 Porcelanato

Pavimento cerâmico da classe porcelanato, ou simplesmente “porcelanato”, é um termo designado para representar uma placa de porcelana, ou pavimento de porcelana que é geralmente obtido pela prensagem de determinada mistura em pó, resultando em uma placa densa, fina, plana e impermeável ^[28].

Mais estritamente, o porcelanato pode ser definido como uma placa porcelânica plana e delgada, de permeabilidade nula, de cor variada, esmaltada ou não, polida ou não, obtida após tratamento térmico (ciclo < 1 hora; temperatura ~ 1235°C) e pela prensagem de misturas de argilas, caulins, feldspatos e outros materiais inorgânicos em pequenas quantidades ^[43].

Composições típicas de porcelanato são apresentadas na Tabela 4 e na Figura 3. As suas principais propriedades são apresentadas na Tabela 5.

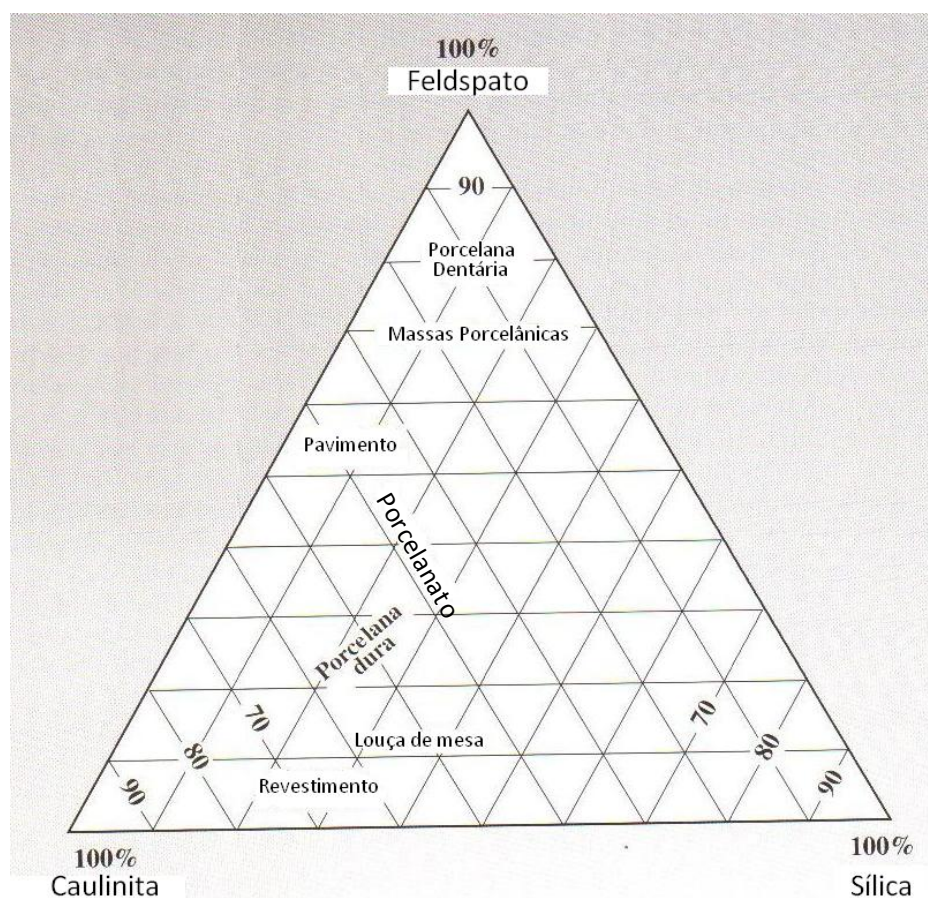


Figura 3 Composição de porcelanato no diagrama sílica-caulinita-quartzo^[43].

Tabela 4 Composições típicas de porcelanato. Valores expressos em % massa.

| Componente | Porcelanato | |
|------------|--------------------|-----------------------|
| Caulim | 27 ^[26] | 15 ^[43] |
| Argila | 29 ^[26] | 35 ^[43] |
| Feldspato | 33 ^[26] | 30 ^[43] |
| Sílica | 11 ^[26] | 19,75 ^[43] |
| talco | - | 0,25 ^[43] |

Tabela 5 Principais propriedades de porcelanato^[40].

| Propriedade | Porcelanato |
|--|-------------|
| Absorção de água (%) | < 0,5 |
| Resistência a flexão (MPa) | 35 |
| Resistência à abrasão (mm ³) | < 175 |
| Resistência ao manchamento (atributo) | > 3 |

2.3 Projeto e análise de experimentos

Experimentos podem ser definidos como testes ou séries de testes os quais se caracterizam por efetuar mudanças nas variáveis de entrada de um processo ou sistema, para que sejam identificadas as razões pelas quais ocorrem modificações nas variáveis de resposta ^[44].

Um processo ou sistema pode ser representado pelo modelo da Figura 4, onde se visualiza o processo como sendo a combinação de operações, máquinas, métodos, pessoas e outras fontes que transformam algumas entradas em saídas que contêm uma ou mais variáveis de resposta. Algumas variáveis representadas por $X_1, X_2, X_3 \dots X_p$ são controláveis (ex.: pressão de compactação, propriedades de materiais, etc.), enquanto outras variáveis $Z_1, Z_2, Z_3 \dots Z_q$ são incontroláveis (ex.: condições climáticas naturais). Os objetivos de um experimento devem incluir:

- Determinação das variáveis que mais influenciam as respostas;
- Determinação da influência das entradas sobre as saídas, para que as saídas correspondam a valores desejados;
- Determinação da influência das entradas sobre as saídas, para que a variabilidade das respostas seja mínima;
- Determinação da influência das entradas sobre as saídas, para que os efeitos das variáveis incontroláveis Z_q sejam minimizados.

Ao transportar estes conceitos ao desenvolvimento de materiais cerâmicos facilmente observa-se que se podem colocar variáveis de mistura como entradas e observar as propriedades finais destas misturas depois de determinados processamentos.

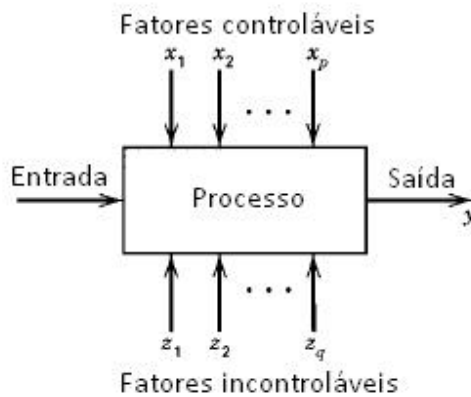


Figura 4 Modelo genérico de um processo ou sistema ^[44].

Projetos de experimentos podem ser elaborados em duas situações principais: uma onde as variáveis de controle são independentes e contínuas (ex.: temperatura de queima, pressão de compactação, etc.) e outra onde há dependência entre as variáveis de controle, como no caso de misturas ($\sum X_1, X_2 \dots X_i = 1$, onde X_i é a fração de um dado componente constituinte sendo $0 \leq X_i \leq 1$).

Para a primeira situação normalmente se utilizam projetos fatoriais completos ou projetos fatoriais fracionados, onde as variáveis de controle são colocadas na entrada do processo em níveis diferentes independentemente. A Figura 5 apresenta uma ilustração do espaço amostral a respeito de um projeto fatorial completo para duas variáveis de entrada, constituindo quatro pontos experimentais a serem testados.

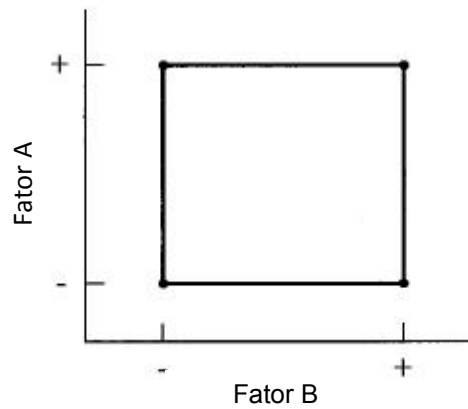


Figura 5 Experimento fatorial de dois fatores. Dois níveis para cada fator.^[44]

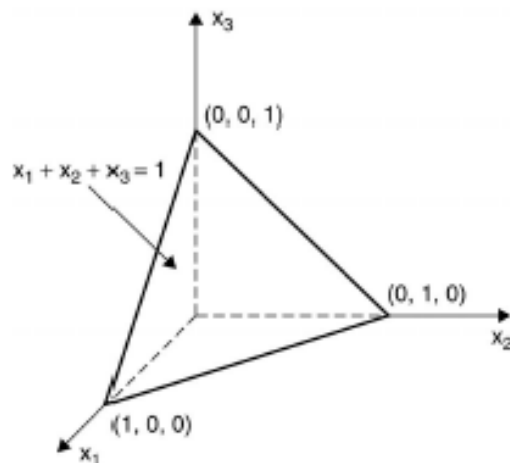


Figura 6 Simplex com três fatores ou componentes^[45].

Para a segunda situação, utiliza-se delineamento de misturas onde o espaço amostral deve obedecer a relação entre os constituintes, o qual é denominado projeto Simplex quando se tem três componentes. A Figura 6 ilustra um espaço amostral para o projeto Simplex. Pontos experimentais são escolhidos de acordo com o objetivo de cada experimento, por exemplo, pode-se excluir um ponto ao centro do triângulo (Figura 6) e obter um experimento que não leva em conta a interação de todos os componentes envolvidos, ao contrário, pode-se utilizar um ponto ao centro do triângulo (Figura 6), caracterizando um projeto Simplex Centróide.

Atualmente os softwares computacionais ^[46,47] desenvolvidos para projeto de experimentos contam com algoritmos (D-optimal ^[45]) próprios para escolha de pontos experimentais distribuídos em regiões de interesse definidas em qualquer espaço amostral, ou seja, independentemente do número de componentes constituintes de uma mistura.

Após realização dos testes pode-se definir a relação entre as variáveis de controle e os resultados experimentais através de regressão polinomial, onde primeiramente verifica-se o ajuste de um polinômio aos dados para posteriormente utilizá-lo para realizar previsões de respostas não contidas no conjunto de testes.

A verificação do ajuste de um polinômio a um conjunto de dados pode ser expressa em função da diferença existente entre um valor predito pelo polinômio e um resultado experimental, ou seja, em função do erro, ou de parâmetros relacionados com o erro. Desta forma, a qualidade do ajuste é inversamente proporcional ao erro, que primariamente pode ser dado pela Equação 1.

$$e = y - \hat{y} \quad (1)$$

onde e corresponde ao erro, y representa o valor da resposta experimental e \hat{y} representa o valor predito pelo polinômio.

A Figura 7 ^[45] ilustra os resultados de um experimento representados pela relação entre respostas e variáveis de controle, os quais são ajustados por um modelo polinomial. O erro atribuído ao ajuste também é apresentado em função da diferença existente entre os resultados experimentais e o modelo proposto.

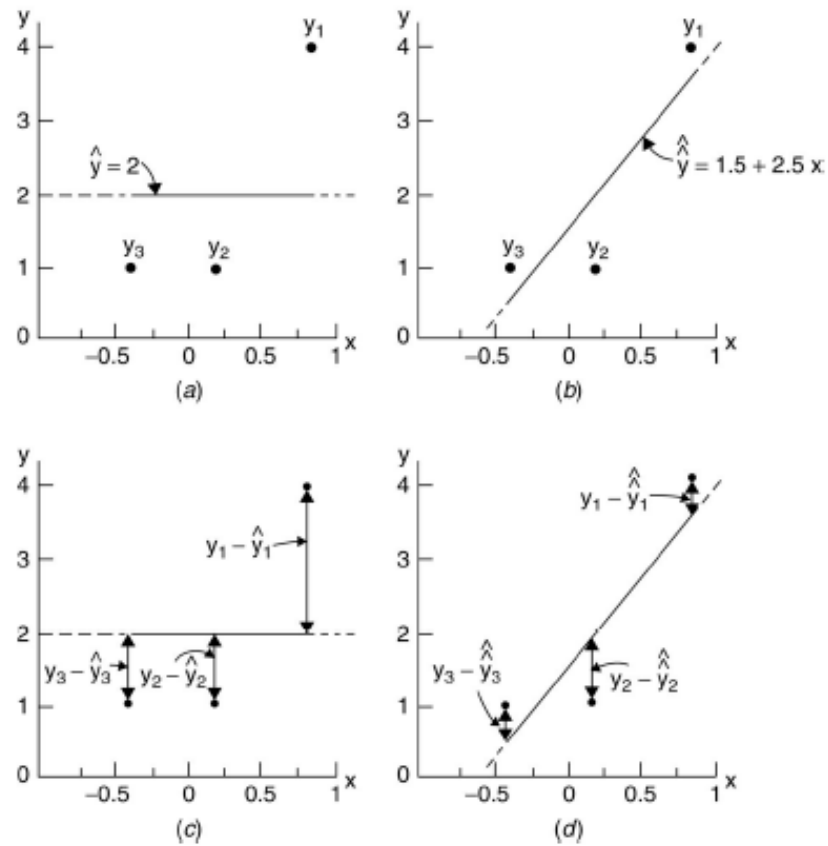


Figura 7 ^[45] – a) Modelo linear de valor médio constante. b) Modelo linear com inclinação tendendo a aproximação dos pontos. c) Erros ao representar os dados pelo modelo linear constante. d) Erros ao representar os dados pelo modelo linear inclinado.

Para um conjunto de dados qualquer, que expresse uma relação entre respostas e variáveis de controle, ajustados por um modelo qualquer, o erro pode ser analisado através do erro médio quadrático (EMQ) obtido pela Equação 2.

$$EMQ = \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2}{N - \nu} \quad (2)$$

onde $y_i - \hat{y}_i$ representa o erro da equação 1 para cada ponto i no conjunto de n pontos. N representa o número de observações e ν o número de tratamentos.

Os termos de um polinômio podem ser determinados através da técnica de mínimos quadrados, a qual define um termo a partir de um parâmetro estimador $\hat{\beta}$, obtido pela

operação matricial dos parâmetros que compõem um experimento conforme apresentado na Equação 3.

$$\hat{\beta} = (X'X)^{-1} X'y \quad (3)$$

onde X representa a matriz composta pelas variáveis de controle e y pelas respostas.

É usual analisar a significância de um modelo, ou termos de um modelo, polinomial através do teste estatístico denominado análise de variância (ANOVA) ou simplesmente teste F. Testam-se duas hipóteses:

$$\begin{aligned} H_0 : \beta_1 = \beta_2 \dots \beta_k = 0 & \quad (\text{Hipótese nula: todos os termos são nulos}) \\ H_1 : \beta_j \neq 0 & \quad (\text{Hipótese alternativa: pelo menos 1 termo é diferente de 0}) \end{aligned}$$

É fundamental a rejeição de H_0 para que um polinômio, ou termo de polinômio, seja significativo e faça sentido utilizá-lo para ajustar o modelo aos dados. A estatística do teste é obtida por F , conforme apresentado na Equação 4.

$$F = \frac{SS_R / (p-1)}{SS_E / (n-p)} \quad (4)$$

onde p representa o número de parâmetros do modelo; n é o número de observações; SS_R é o erro quadrático atribuído ao modelo e SS_E é erro quadrático obtido a partir do erro da Equação 1. As Equações 5 e 6 apresentam SS_R e SS_E .

$$SS_R = \hat{\beta}' X' y - \frac{\left(\sum_{i=1}^n y_i \right)^2}{n} \quad (5)$$

$$SS_E = \sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2 \quad (6)$$

Para julgar se um modelo bem representa um conjunto de dados é usual o avaliar um termo definido pela proporção da variabilidade de um modelo em relação aos dados ajustados. Denomina-se por coeficiente de determinação múltipla, ou simplesmente R^2 , o qual varia entre 0 e 1, sendo desejável o valor 1, que representa ótimo ajuste do modelo aos dados. R^2 é obtido conforme apresentado na Equação 7.

$$R^2 = \frac{SS_R}{SS_T} = 1 - \frac{SS_E}{SS_T} \quad (7)$$

onde SS_T é o erro quadrático total, obtido conforme apresentado na Equação 8.

$$SS_T = y' y - \frac{\left(\sum_{i=1}^n y_i \right)^2}{n} \quad (8)$$

Um modelo polinomial pode ser usado com segurança caso seus termos e ele próprio sejam significantes e R^2 seja muito próximo de 1. É importante relatar que há uma relação diretamente proporcional entre o número de dados experimentais e o grau de um polinômio, por exemplo, em um experimento com mistura de 7 componentes é necessário no mínimo 7 pontos experimentais para ajuste de um modelo linear e 28 pontos experimentais para ajuste de um modelo quadrático. Logo, obter o melhor modelo com o menor número de pontos experimentais configura a situação mais rápida e econômica para execução de um experimento.

2.4 Redes neurais artificiais

No decorrer da exploração do sistema nervoso humano foi possível interpretar e modelar o funcionamento do cérebro, sendo definido de uma forma resumida como um computador altamente complexo, não-linear e paralelo, composto por uma organização de unidades constituintes conhecidas por neurônios e capaz de realizar certos processamentos de forma muito rápida.

De um ponto de vista histórico, as referências bibliográficas disponíveis destacam um trabalho publicado por McCulloch e Pitts (1943), o qual continha a primeira descrição de um modelo de neurônio artificial que por sua vez era um dispositivo binário, onde sua saída poderia ser “tudo ou nada” e dependia da soma ponderada de suas entradas excitatórias ou inibitórias, conforme ilustrado na Figura 8.

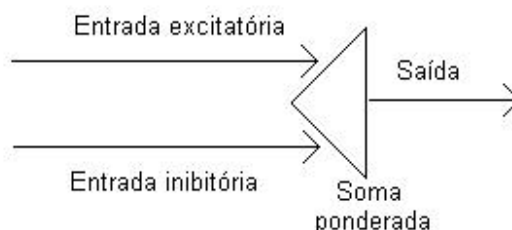


Figura 8 Representação do Neurônio de McCulloch e Pitts^[48].

McCulloch e Pitts propuseram que “a inteligência é equivalente ao cálculo de predicados que por sua vez pode ser implementado por funções booleanas. Por outro lado, o sistema nervoso é composto de redes de neurônios com a capacidade básica de implementar estas funções. Assim, a ligação entre inteligência e atividade nervosa fica estabelecida de forma científica.”^[48]

Com a inspiração deste trabalho pioneiro, outros autores puderam dar continuidade ao desenvolvimento e aplicação dos modelos de “inteligência artificial” baseados em redes neurais. Atualmente a descrição destes modelos está bem estabelecida^[49] e define uma rede neural artificial como um processador paralelamente distribuído constituído de unidades de processamento simples, que têm a propensão natural para armazenar conhecimento experimental e torná-lo disponível para o uso. Uma rede neural artificial se assemelha ao cérebro em dois aspectos:

- O conhecimento é adquirido pela rede a partir de seu ambiente através de um processo de aprendizagem;
- Forças de conexão entre neurônios, conhecidas como pesos sinápticos, são utilizados para armazenar o conhecimento adquirido.

Para entender o funcionamento de uma rede neural, é imprescindível conhecer o modelo mais aceito de sua unidade de processamento, o qual está ilustrado na Figura 9.

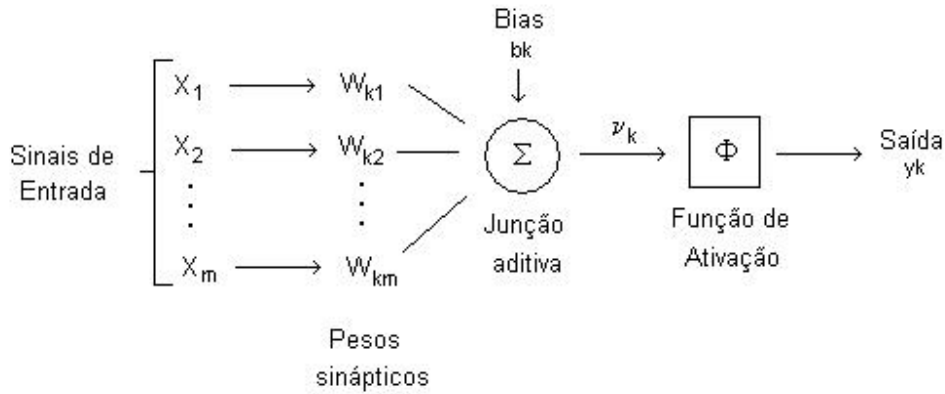


Figura 9 Modelo de um neurônio artificial ^[49].

Uma entrada X_j conectada ao neurônio k é multiplicada por seu peso sináptico W_{kj} . A junção aditiva Σ é conhecida como um combinador linear, a qual efetua um somatório das entradas ponderadas pelas respectivas sinapses, resultando em um potencial de ativação v_k , que constitui a entrada da função de ativação ou função restritiva Φ , pois restringe a saída do neurônio em um valor finito tipicamente normalizado contido no intervalo $[0, 1]$ ou alternativamente $[-1, 1]$.

O valor Bias b_k , pode ser aplicado externamente, o qual possui o efeito de aumentar ou diminuir a entrada da função de ativação.

De modo analítico pode-se descrever um neurônio artificial com o par de equações:

$$u_k = \sum_{j=1}^m w_{kj} x_j \quad (9)$$

e

$$y_k = \Phi(u_k + b_k) \quad (10)$$

onde X_j são os sinais de entrada; W_{kj} são pesos sinápticos do neurônio k ; u_k é a saída do combinador linear; b_k é o *bias*, análogo ao coeficiente linear de uma função linear. Ressalta-se que a soma de u_k e b_k pode ser substituída por um termo conhecido

por potencial de ativação v_k ; Φ é a função de ativação; e y_k é o sinal de saída do neurônio.

Exemplos de funções de ativação estão apresentados na Figura 10. Ressalta-se novamente que estas funções devem apenas restringir a saída do neurônio em um intervalo finito normalizado. A função de ativação implementada por McCulloch e Pitts em um neurônio artificial é conhecida por função de limiar a qual limita a saída de um neurônio apenas em duas possibilidades, “tudo ou nada” compreendido em 0 ou 1.

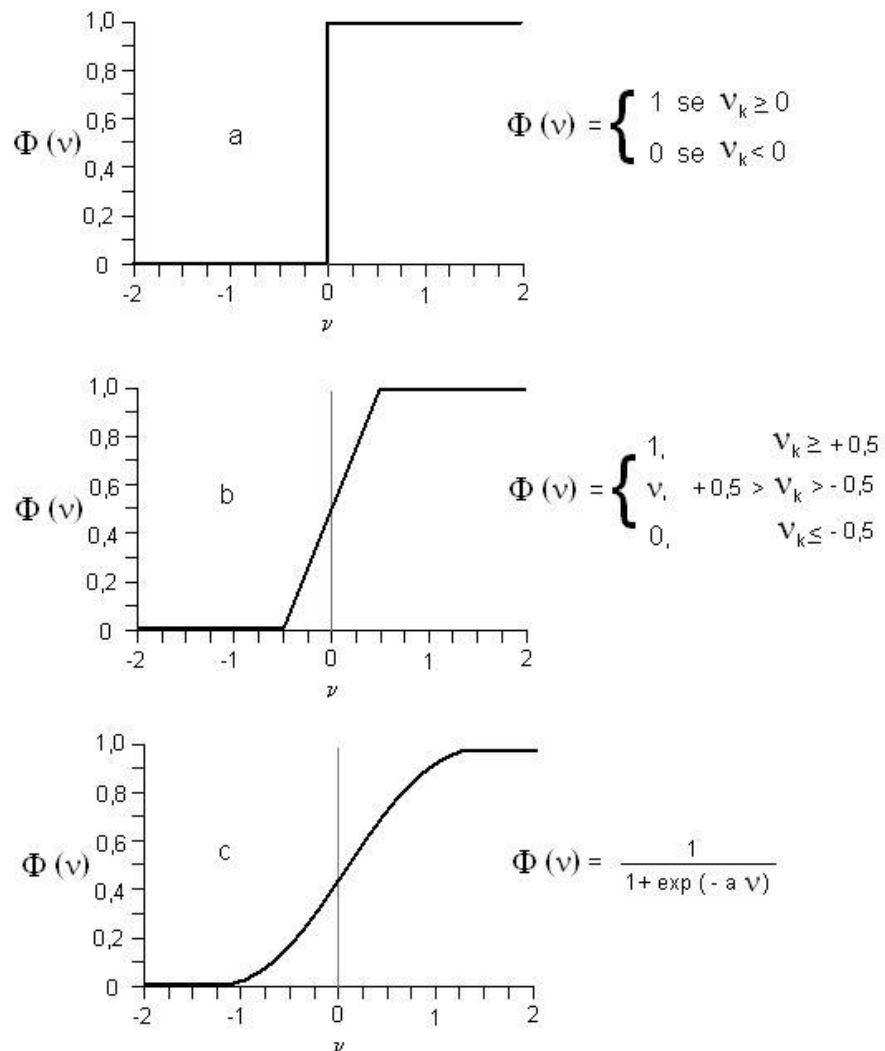


Figura 10 Funções de ativação. (a) Limiar, (b) Linear por partes e (c) Sigmóide^[49].

Ao se conectar conjuntos de neurônios, ou melhor, camadas de neurônios, pode se construir uma rede neural artificial, onde a saída de um neurônio configura a entrada de outro, como exemplificado na Figura 11. Infinitas combinações podem configurar a arquitetura de uma rede neural, porém ainda não se têm regras exatas que relacionam a arquitetura e a aplicação de uma rede.

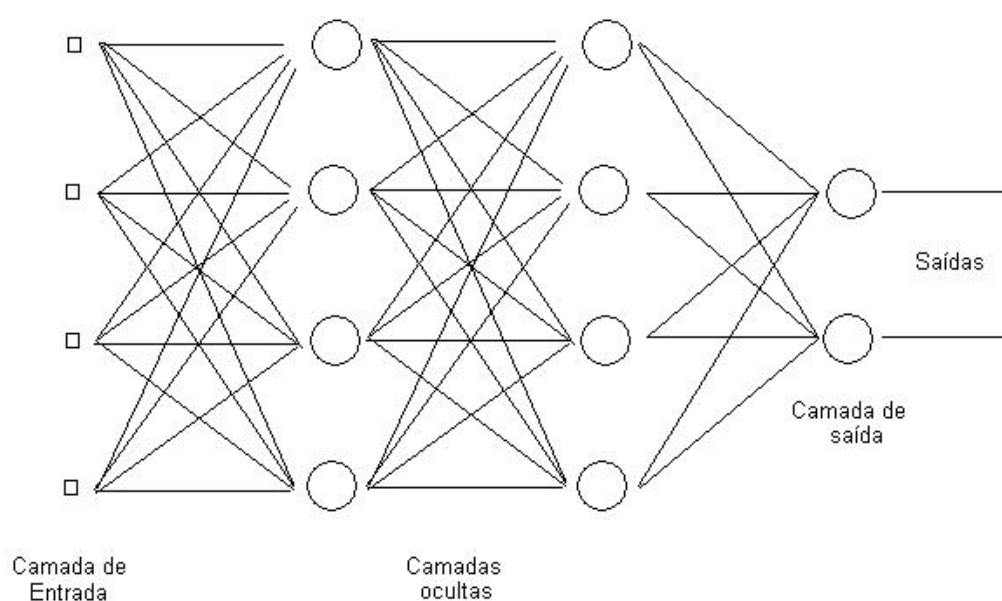


Figura 11 Ilustração de uma rede neural completamente conectada^[49].

2.4.1 Aprendizagem de Redes Neurais Artificiais

A propriedade mais importante das redes neurais artificiais é a capacidade de aprender a partir do ambiente em que está inserida e melhorar seu desempenho através da aprendizagem. A rede aprende sobre seu ambiente através da alteração de seus parâmetros livres (pesos e *bias*), realizada por um processo iterativo.

Define-se “aprendizagem”, no contexto aplicável a redes neurais artificiais, como o processo pelo qual os parâmetros livres de uma rede neural são ajustados através de um

processo de estimulação pelo ambiente no qual a rede está inserida. O tipo de aprendizagem é determinado pela maneira que ocorre a modificação dos parâmetros.

Conjuntos de regras bem definidas para execução da aprendizagem são chamados de algoritmos de aprendizagem. Quando se usam redes neurais como aproximadores de funções, utilizam-se algoritmos baseados na correção de erro para o processo de aprendizagem.

No treinamento de uma rede, apresentam-se dados que representam o ambiente em que a rede está inserida, por exemplo, formulações cerâmicas e suas respectivas propriedades. O algoritmo de aprendizagem deve ajustar os parâmetros livres da rede para que o erro quadrático total (Equação 11), entre as saídas previstas pela rede e os dados de treinamento, análogo ao erro da Equação 1, seja minimizado.

$$e_T = \sum_n (y_{(n)} - s_{(n)})^2 \quad (11)$$

onde y é uma saída desejada representada por um resultado experimental e s é uma saída da rede.

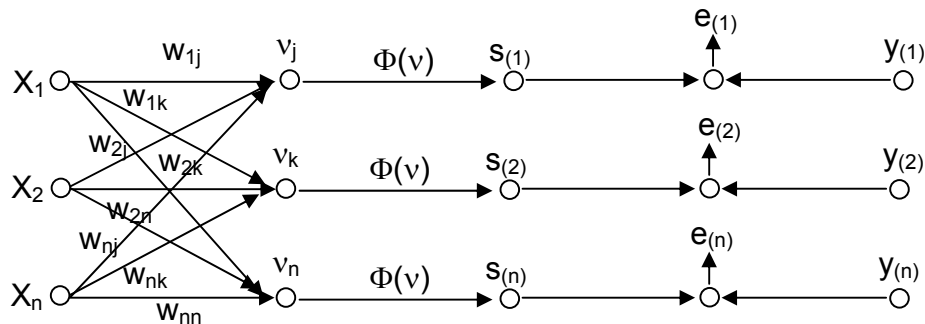


Figura 12 Obtenção do erro.

O erro quadrático total ($e_{(T)}$) é minimizado em função dos valores assumidos pelos pesos (w). Logo, define-se que o erro é uma função dos pesos. Um algoritmo de correção de erro, atua na situação em que os valores X e y são mantidos constantes, alterando os valores w através de um processo iterativo que considera o gradiente descendente da função erro. As iterações são compostas por dois passos: alimentação em adiante

(esquerda para direita na Figura 12), onde os erros são obtidos; e retro-propagação do erro (direita para esquerda na Figura 12), onde os pesos são ajustados conforme a regra da Equação 12.

$$w_{i+1} = w_i - \eta \frac{\partial e}{\partial w} \quad \text{Equação 12}$$

onde w_{i+1} é o novo peso; w_i é o peso atual, η é a constante de aprendizagem e $-\frac{\partial e}{\partial w}$ é o gradiente descendente da função erro.

O número de iterações aumenta até que o erro seja mínimo. Neste ponto a rede está treinada e definem-se os valores w que são apropriados para relacionar os dados x e y .

A matriz de pesos é armazenada e utilizada quando se deseja obter um valor y a partir de um valor x não contido no processo de treinamento.

Algoritmos que fazem uso da Equação 12 são classificados como transformadores de primeira ordem, em função da derivação da função erro ser de primeira ordem (ex.: algoritmo *back propagation*). Atualmente pode-se incluir mais dois termos no lugar de η na Equação 12: uma constante λ e um termo com a derivada de segunda ordem da função erro. Um algoritmo de segunda ordem (ex.: algoritmo de Levenberg-Marquardt ^[50]) tem sucesso ao encontrar mais rapidamente o mínimo global da função erro em comparação a algoritmos de primeira ordem.

Desta forma, define-se que o conhecimento de uma rede neural está armazenado na matriz de pesos, estando disponível para prever respostas (y) a partir de entradas (x) não contidas no treinamento.

Ao apresentar um conjunto de dados experimentais, obtidos pelo planejamento de experimentos com misturas cerâmicas, durante o treinamento de uma rede neural, pode-se avaliar a capacidade preditiva da mesma através de R^2 e do erro em prever as propriedades de misturas não apresentadas durante o treinamento.

3. MATERIAIS E MÉTODOS

Os experimentos foram realizados nos laboratórios da empresa T-cota Engenharia de Materiais Cerâmicos, situada em Tijucas – SC, onde a reprodução das etapas de fabricação industrial para cada sistema ocorreu em escala reduzida. As etapas executadas no trabalho ocorreram de forma seqüencial conforme fluxograma da Figura 13.

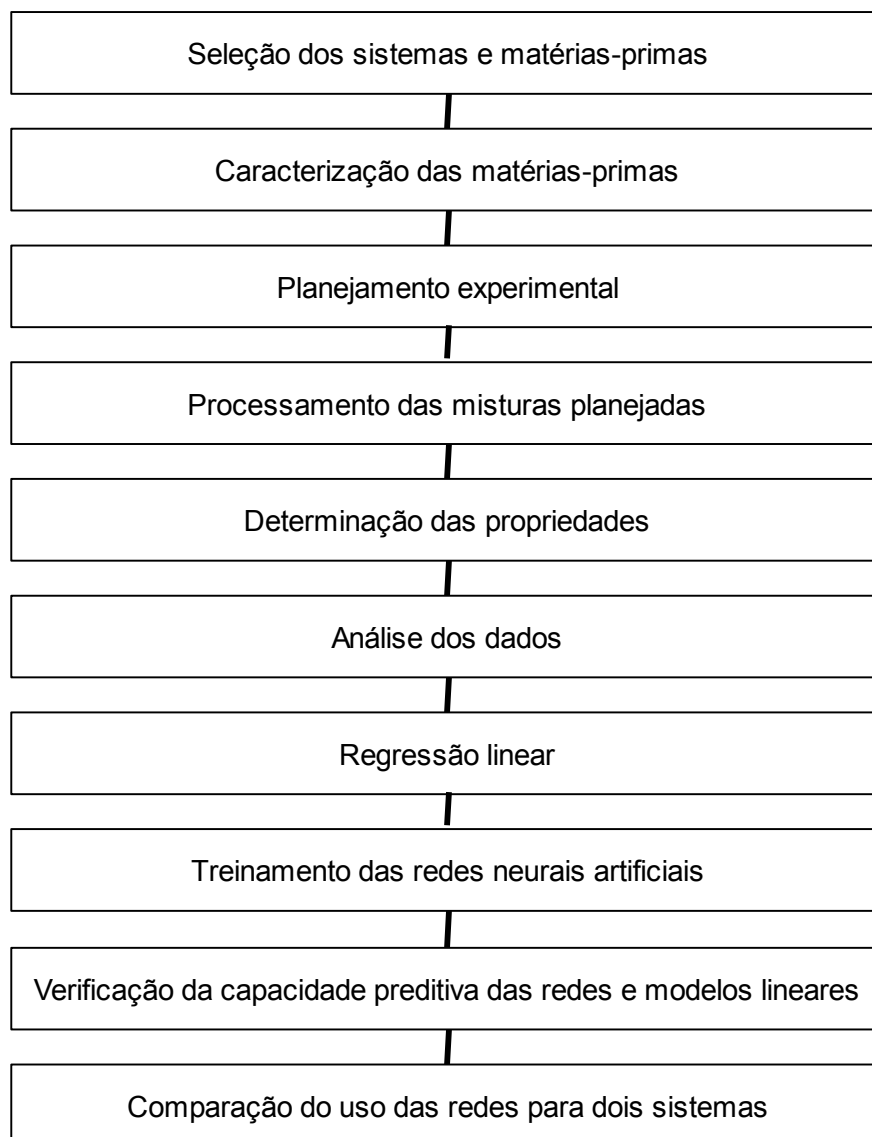


Figura 13 Fluxograma das etapas do trabalho.

3.1 Seleção e caracterização das matérias-primas

As matérias-primas foram selecionadas e obtidas em duas empresas brasileiras do setor industrial cerâmico. Foram selecionadas todas as matérias-primas disponíveis em linha de produção no ano de 2007, destinadas à composição de massas das empresas consultadas.

A fim de preservar informações industriais, as matérias-primas foram identificadas por códigos definidos pela função que exercem nas misturas: “F” para fundente, “R” para refratário e “P” para plástico. Apresentam-se pela descrição das principais características, conforme Tabela 6.

Tabela 6 Materiais empregados para os sistemas.

| Sistema | Código | Descrição |
|--|--------|--|
| Porcelana Elétrica para isoladores (I) | I-F1 | Rocha com elevado teor de feldspato potássico |
| | I-R1 | Alumina 99,9% |
| | I-P1 | Argila ilítica de baixa fusibilidade |
| | I-P2 | Argila ilítica de média fusibilidade |
| | I-P3 | Argila ilítica de alta fusibilidade |
| | I-P4 | Argila caulínica de baixa fusibilidade |
| | I-P5 | Bentonita com alto teor de montmorilonita |
| | I-P6 | Caulim de aspecto vermelho passante em peneira #200 mesh |
| | I-P7 | Caulim de aspecto branco passante em peneira #200 mesh |
| | I-P8 | Caulim de aspecto branco passante em peneira #325 mesh |
| Porcelanato (P) | P-F1 | Rocha com elevado teor de feldspato sódico e de calcita |
| | P-F2 | Rocha com elevado teor de feldspato sódico |
| | P-F3 | Talco ou filosilicato de magnésio |
| | P-F4 | Filito de baixa plasticidade e alto conteúdo de K ₂ O |
| | P-P1 | Argila caulínica de alta fusibilidade |
| | P-P2 | Argila caulínica de média fusibilidade |
| | P-P3 | Argila caulínica de baixa fusibilidade |
| | P-P4 | Bentonita ou argila com alto teor de montmorilonita |
| | P-P5 | Caulim de aspecto branco passante em peneira #200 mesh |
| | P-P6 | Caulim bruto |

Cada matéria-prima foi caracterizada individualmente quanto à composição química por fluorescência de raios X (Panalytical, Minipal 4) e também se efetuou a caracterização física quanto à densidade aparente a seco, resistência mecânica a flexão a seco, retração linear de queima, absorção de água pós-queima e densidade aparente pós-queima, a partir de corpos obtidos por prensagem uniaxial, conforme parâmetros de processamento apresentados na Tabela 7.

Tabela 7 Parâmetros de processamento para caracterização das matérias-primas.

| | | | Sistema | | | |
|----------------------------|--------------------------------|------------------|--------------------|-----------|----------------|-----------|
| | | | Porcelana Elétrica | | Porcelanato | |
| | | | Característica | | Característica | |
| | | | Plástica | Rochosa | Plástica | Rochosa |
| Moagem (Moinho orbital) | Meio | | Via seca | Via úmida | Via seca | Via úmida |
| | Resíduo | Peneira (#mesh) | | 325 | | 270 |
| | | Massa retida (%) | | 4,5 a 5,0 | | 2,0 a 3,5 |
| | Tempo (min) | | 5 | Variável | 5 | Variável |
| Prensagem | Água (%) | | 5,5 | 5,5 | 6,5 | 5,5 |
| | Aditivo ligante* (%) | | 0 | 5,5 | 0 | 5,5 |
| | Pressão (kgf/cm ²) | | 243 | | 280 | |
| Queima | Tempo em patamar (min) | | 10 | | 10 | |
| | Tempo total (min) | | 51 | | 51 | |
| | Temperatura (°C) | | 1160 e 1180 | | 1200 | |

* Solução aquosa, 50% de aditivo a base de amidos modificados; Amisolo[®] (Lamberti)

Pelo fato de a caracterização física individual das matérias-primas servir como banco de dados para a etapa de planejamento experimental, estas devem ser submetidas a parâmetros de processamento semelhantes dentro de cada sistema.

Devido à característica natural das matérias-primas, foi realizada moagem via úmida para os materiais rochosos, pois estes necessitam quebra de partículas para facilitar o processamento. Os materiais plásticos apresentam-se naturalmente com tamanho de partículas adequado ao processamento, apenas necessitando de quebra de grânulos obtida por curto período, a seco, em moinho do tipo periquito.

Quanto à prensagem, os materiais de característica rochosa necessitam de aditivo ligante (amidos modificados, Amisolo, Lamberti) para promoção de plasticidade, pois não exibem plasticidade intrínseca. Ao contrário, os materiais plásticos, necessitam apenas de água para viabilização da retenção de forma pós-prensagem.

A queima ocorreu em fornos a rolo para laboratório (Jung), parametrizado segundo tempos e temperaturas definidas pela Tabela 7.

3.2 Planejamento experimental

O planejamento de experimentos com misturas exige a determinação dos limites do espaço amostral, ou seja, a determinação de quanto será permitido variar cada componente envolvido, além da escolha do modelo que se pretende ajustar às respostas e a definição das formulações de composição a serem processadas. Neste trabalho, escolheu-se o modelo linear durante o planejamento experimental pelo fato de este proporcionar o menor número de formulações a serem processadas, conseqüentemente sendo de execução mais rápida que experimentos que visam modelos polinomiais de graus mais elevados.

Devido ao número de matérias-primas envolvidas em cada sistema, fez-se uso do programa de computador Echip 7.0 para auxiliar o planejamento experimental, pois neste programa há rotinas pré-programadas a partir de algoritmos D-optimal que determinam os teores de cada componente de modo a facilitar a análise das respostas.

3.2.1 Porcelana para isoladores elétricos

A partir da caracterização química e física das matérias-primas selecionadas para este sistema e pelo critério de evitar misturas com propriedades extremas (p.ex.: 0% de absorção de água abaixo de 1000°C, ou maior que 20% a 1250°C), deve-se determinar a região do espaço amostral a ser explorado no experimento. Para o caso deste sistema multicomponente, apresentam-se na Tabela 8 os limites da região selecionada.

Tabela 8 Limites do espaço amostral.

| Limites (%) | Matéria-prima | Mínimo | Máximo |
|----------------|--------------------------|--------|--------|
| | I-F1 | 15 | 25 |
| | I-R1 | 35 | 45 |
| | I-P1 | 0 | 25 |
| | I-P2 | 0 | 25 |
| | I-P3 | 0 | 25 |
| | I-P4 | 0 | 25 |
| | I-P5 | 0 | 5 |
| | I-P6 | 0 | 25 |
| | I-P7 | 0 | 25 |
| | I-P8 | 0 | 25 |
| Restrições (%) | I-P1+I-P2+I-P3+I-P4+I-P5 | 15 | 30 |
| | I-P6+I-P7+I-P8 | 0 | 40 |

O critério para escolha dos limites para o material F1 deve-se a prevenção de falta e excesso de fase líquida durante a sinterização. Para o material R1, componente que garante grande parte da resistência mecânica final, não se ultrapassou 45% em função da elevada refratariedade.

Os plásticos, com exceção de P5, foram limitados a 25% para garantir a plasticidade das misturas durante a conformação. P5 foi limitado a 5% devido à propensão natural de elevar demasiadamente a viscosidade de misturas em suspensões aquosas.

As restrições limitam a soma de P1, P2, P3, P4 e P5 entre 15 e 30%, assim evitando misturas isentas de argilas e garantindo plasticidade. A soma de P6, P7 e P8 não deve ultrapassar 40% para que não ocorram misturas com excesso de caulim.

A partir da seleção das matérias-primas e definidos os limites do espaço amostral, pode-se determinar as formulações das misturas a serem experimentadas, através de um algoritmo D-optimal, conforme resultado expresso na Tabela 9.

Tabela 9 Formulações das misturas para o sistema de porcelana elétrica.

| Mistura | Fórmula de composição (% em massa) | | | | | | | | | |
|---------|------------------------------------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| | F1 | R1 | P1 | P2 | P3 | P4 | P5 | P6 | P7 | P8 |
| 1 | 15 | 35 | - | 25 | - | - | - | 25 | - | - |
| 2 | 15 | 35 | 25 | - | - | - | - | - | 25 | - |
| 3 | 15 | 35 | - | - | 25 | - | - | - | - | 25 |
| 4 | 25 | 45 | - | - | - | 25 | 5 | - | - | - |
| 5 | 15 | 35 | - | - | - | 25 | - | - | 25 | - |
| 6 | 25 | 35 | - | 25 | 5 | - | - | - | 10 | - |
| 7 | 15 | 45 | - | 10 | - | - | 5 | - | 25 | - |
| 8 | 25 | 35 | 10 | - | - | - | 5 | 25 | - | - |
| 9 | 15 | 35 | 25 | - | - | - | 5 | - | - | 20 |
| 10 | 25 | 35 | - | - | 25 | - | 5 | - | 10 | - |
| 11 | 25 | 35 | - | - | - | 15 | - | - | - | 25 |
| 12 | 15 | 35 | - | - | - | 25 | 5 | 20 | - | - |
| 13 | 25 | 45 | 25 | 5 | - | - | - | - | - | - |
| 14 | 15 | 45 | - | - | 15 | - | - | 25 | - | - |
| 15 | 15 | 45 | - | 10 | - | - | 5 | - | - | 25 |

Ressalta-se que as misturas de 1 a 5 foram eleitas para serem replicadas a fim de que seja realizada uma verificação da repetibilidade dos resultados.

3.2.2 Porcelanato

Também a partir da caracterização química e física das matérias-primas selecionadas para este sistema e pelo critério de evitar misturas com propriedades extremas (p.ex.: 0% de absorção de água abaixo de 1000°C, ou maior que 20% a 1250°C), deve-se determinar a região do espaço amostral a ser explorado no experimento. Apresentam-se os limites da região selecionada Tabela 10.

Tabela 10 Limites do espaço amostral.

| Limites (%) | Matéria-prima | Mínimo | Máximo |
|-----------------------|----------------------|---------------|---------------|
| | P-F1 | 0 | 20 |
| | P-F2 | 30 | 50 |
| | P-F3 | 0 | 5 |
| | P-F4 | 0 | 10 |
| | P-P1 | 0 | 15 |
| | P-P2 | 0 | 15 |
| | P-P3 | 0 | 15 |
| | P-P4 | 0 | 8 |
| | P-P5 | 0 | 25 |
| | P-P6 | 0 | 25 |
| Restrições (%) | P-F1+P-F2 | 0 | 60 |
| | P-P1+P-P2+P-P3 | 0 | 20 |
| | P-P5+P-P6 | 0 | 25 |

A fim de restringir um limite mínimo para propriedades pós-queima, os materiais F1, F3 e F8 foram limitados a um máximo de 20, 5 e 8%, respectivamente, assim como a soma de F1 e F2 não ultrapasse 60%. Os outros limites e restrições foram impostos a fim de evitar massas extremamente refratárias. Desta forma, as possíveis combinações formadas dentro do espaço amostral restrito devem se aproximar das condições praticadas industrialmente.

Como resultado dos limites e restrições impostos à formulação efetuada com auxílio de Algoritmo D-optimal, apresentam-se na Tabela 11 as formulações das misturas processadas para este sistema.

Tabela 11 Formulações para o sistema de porcelanato.

| Mistura | Fórmula de composição (% em massa) | | | | | | | | | |
|---------|------------------------------------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| | F1 | F2 | F3 | P1 | P2 | P3 | P4 | P5 | P6 | P7 |
| 1 | 20 | 40 | - | - | 15 | - | - | - | 25 | - |
| 2 | - | 50 | - | 15 | - | 2 | 8 | 25 | - | - |
| 3 | - | 50 | 2 | - | - | 15 | 8 | - | 25 | - |
| 4 | - | 50 | 5 | - | 15 | 5 | - | 15 | - | 10 |
| 5 | 12 | 30 | 5 | 15 | 5 | - | 8 | - | 25 | - |
| 6 | 10 | 50 | 5 | - | 15 | 5 | 8 | 7 | - | - |
| 7 | 17 | 30 | - | - | 15 | 5 | 8 | 15 | - | 10 |
| 8 | 10 | 50 | 5 | - | 2 | - | 8 | 15 | - | 10 |
| 9 | 20 | 35 | 5 | 15 | - | - | - | 25 | - | - |
| 10 | - | 50 | 5 | 15 | - | 5 | - | - | 15 | 10 |
| 11 | 20 | 40 | 5 | - | 2 | - | 8 | - | 25 | - |
| 12 | 12 | 30 | 5 | - | 5 | 15 | 8 | - | 15 | 10 |
| 13 | 20 | 40 | - | 5 | - | 15 | - | - | 10 | 10 |
| 14 | 20 | 30 | 5 | - | - | 15 | 5 | 25 | - | - |
| 15 | 20 | 40 | 5 | 15 | - | 2 | 8 | - | - | 10 |

As misturas de 1 a 5 foram escolhidas para serem replicadas, a fim de se obter uma avaliação quanto à repetibilidade dos resultados.

3.3 Processamento cerâmico

Pretendendo atribuir aplicabilidade industrial para este trabalho, efetuou-se processamento das composições distintamente para cada sistema, a fim de respeitar a condição industrial de cada um. Apresentam-se em sequência e separadamente os parâmetros de processamento das misturas de cada sistema.

3.3.1 Porcelana para isoladores elétricos

Apresentam-se na Tabela 12 os parâmetros de processamento para este sistema.

Tabela 12 Parâmetros de processamento para misturas de porcelana.

| Etapa | Parâmetro | | Valor |
|--------------|--------------------------------|------------|--------------|
| Moagem | Água (%) | | 40 |
| | Sólido (%) | | 60 |
| | Resíduo | Malha | 325 |
| | | (%) Retido | 4,5 a 5,0 |
| Prensagem | Umidade (%) | | 5,5 |
| | Pressão (kgf/cm ²) | | 243 |
| Queima | Ciclo (min) | | 240 |
| | Tempo em patamar (min) | | 120 |
| | Temperatura máx. (°C) | | 1220 e 1240 |

Obteve-se 600,00g de cada composição em estudo através de balança com precisão de $\pm 0,01$ g.

A moagem em meio aquoso ocorreu em moinho de bolas de alumina, sendo respeitado o resíduo de moagem especificado na Tabela 3, independentemente do tempo de moagem necessário para cada mistura.

A secagem das misturas moídas ocorreu em estufa a $100^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$ até a observação de ausência de perda de massa. Misturas secas foram submetidas ao moinho de bolas de alumina novamente por tempo de 2 min a fim de quebrar grânulos e facilitar homogeneização de umidade aplicada em seqüência.

Fez-se uso do processo de prensagem uniaxial para processamento destas misturas em razão da geometria e tamanho dos corpos-de-prova, respeitando-se o grau de compactação empregado via extrusão. A extrusão é o processo de conformação usual para obtenção de isoladores elétricos de médio e grande porte. Logo, caso fosse necessária a obtenção de corpos-de-prova de dimensões maiores do que as aqui empregadas, ou em análises onde o processo de conformação apresente influência sobre as propriedades de interesse, seria indicada a conformação por extrusão.

A queima ocorreu em forno tipo mufla (marca Jung, modelo 0913) com condição de programação similar a curvas de queima industriais para obtenção de isoladores elétricos. Empregaram-se curvas com uma única taxa de aquecimento ($10^{\circ}\text{C}/\text{min}$) seguida do patamar nas temperaturas especificadas na Tabela 12. O resfriamento ocorreu naturalmente com o forno até a temperatura de 100°C , quando houve resfriamento forçado até a temperatura ambiente.

3.3.2 Porcelanato

Apresentam-se na Tabela 13 os parâmetros de processamento para este sistema.

Tabela 13 Parâmetros de processamento para misturas de porcelanato.

| Etapa | Parâmetro | | Valor |
|------------|--------------------------------|------------|------------|
| Moagem | Água (%) | | 40 |
| | Sólido (%) | | 60 |
| | Resíduo | Malha | 325 |
| | | (%) Retido | 4,5 a 5,0 |
| Prensagem | Umidade (%) | | 6,5 |
| | Pressão (kgf/cm ²) | | 300 |
| Queima | Ciclo (min) | | 51 |
| | Tempo em patamar (min) | | 10 |
| | Temperatura de patamar (°C) | | 1100; 1120 |
| | | | 1140; 1160 |
| 1170; 1180 | | | |
| 1190; 1200 | | | |

Utilizou-se o mesmo procedimento de moagem e secagem empregado para as misturas do sistema de porcelana para isoladores elétricos até a etapa de queima.

Fez-se uso do processo de conformação por prensagem uniaxial (prensa Mignon, Nannetti) também para este sistema, o qual é industrialmente empregado para obtenção de porcelanato.

Para queima, utilizou-se forno a rolos (forno Nannetti) com dimensões laboratoriais, porém com capacidade para reprodução de ciclos de queima industriais nas temperaturas especificadas na Tabela 13.

3.4 Determinação das propriedades

Para o sistema de porcelana para isoladores elétricos as seguintes propriedades foram estudadas:

- Densidade aparente a seco pós-prensagem;
- Resistência mecânica a flexão pós-queima;
- Densidade aparente pós-queima, absorção de água e retração linear de queima em função da temperatura de queima;
- Flecha de deformação pirolástica.

As densidades aparentes a seco e pós-queima foram determinadas por imersão em mercúrio segundo procedimento ITC E8-B ^[51].

A resistência mecânica a flexão pós-queima foi determinada segundo norma NBR 13818 (1997) ^[52] com cinco corpos-de-prova. Calculou-se a média de resultados dos corpos-de-prova submetidos a tratamento térmico em temperaturas específicas para cada mistura, na qual a absorção de água aproxima-se de zero, em virtude de ser uma condição de eliminação de porosidade aberta.

A retração linear foi determinada com dois corpos-de-prova, em função da temperatura de queima segundo procedimento ITC E9-B ^[50]. A absorção de água pós-queima foi determinada com dois corpos-de-prova em função da temperatura de queima segundo procedimento ITC E10-B ^[50].

A flecha de deformação pirolástica foi determinada com dois corpos-de-prova por procedimento que consiste na medida do comprimento (em mm) proporcional ao raio de curvatura de um corpo-de-prova cerâmico (100 mm de comprimento, 10 mm de largura e 5 mm de espessura) submetido a tratamento térmico simplesmente apoiado pelas extremidades ^[53]. Para esta propriedade foi utilizada a mesma temperatura de queima para determinação da resistência mecânica a flexão pós-queima.

3.5 Análise e predição de dados

Através do mesmo programa computacional para planejamento experimental (Echip 7.0) foi possível verificar o ajuste de modelos polinomiais entre o teor das matérias-primas escolhidas e as propriedades em estudo. Utilizou-se o coeficiente estatístico de determinação múltiplo (R^2) e o coeficiente estatístico de significância (P), sendo análogo ao coeficiente F, porém aplicado a cada termo do polinômio, para avaliação da qualidade dos modelos ajustados. Iniciou-se os ajustes por modelos polinomiais de primeira ordem (lineares), seguidos de ajustes por modelos de segunda ordem quando os primeiros apresentaram falta de ajuste.

Constituiu-se uma rede neural artificial para cada propriedade em estudo através do uso do programa computacional MatLab R13. Os parâmetros de composição da rede foram o número de neurônios da camada oculta e o número de iterações de

aprendizagem, estando fixadas uma camada de entrada, uma camada intermediária e uma camada de saída, sendo observado o coeficiente de determinação (R^2) para avaliação do ajuste da rede sobre os valores das propriedades em estudo.

Os códigos de programação em MatLab R13 utilizados foram desenvolvidos pelo Dr. Eng. Carlos Alberto Claumann, membro do Laboratório de Controle de Processos da Universidade Federal de Santa Catarina. Utilizou-se um código para definição da rede e outro para treinamento conforme etapas apresentadas abaixo:

Código 1: Definição e uso da rede

1. Definição das matrizes de dados: $[X,Y]=\text{dados_de_entrada}$;
 $X \rightarrow$ variáveis de controle.
 $Y \rightarrow$ respostas.
2. Normalização dos dados entre -0,9 e 0,9;
3. Definição da matriz de pesos $[w]$, composta inicialmente por números aleatórios;
4. Definição do número de neurônios: parâmetro ajustável pelo usuário;
5. Definição da função de ativação Φ : tangente hiperbólica;
6. Comando para obtenção de Y , conforme Equação 10;
7. Comando para obtenção do erro médio quadrático, conforme Equação 1;
8. Comando para obtenção de R^2 , conforme Equação 7.

Código 2: Treinamento com Algoritmo de Levenberg-Marquardt ^[50]

1. Definição do número de iterações: parâmetro ajustável pelo usuário;
2. Definição da constante (λ) do termo de segunda ordem: parâmetro ajustável pelo usuário;
2. Definição da matriz de erro, conforme Equação 11;
3. Obtenção dos valores de erro, conforme ilustrado na Figura 15 e Equação 10;
4. Ajuste dos pesos em função do gradiente descendente da função erro;
5. Execução das iterações definidas pelos passos 3 e 4 até o número definido no passo 1;
6. Armazenamento da matriz de pesos.

A verificação da capacidade preditiva dos modelos lineares e das redes neurais artificiais foi efetuada por experimentos de verificação, a partir dos quais se processaram formulações diferentes das contidas no conjunto determinado pelo planejamento experimental. O critério de comparação entre a capacidade preditiva dos modelos lineares e das redes foi o erro percentual encontrado entre a resposta real das composições de verificação e os valores indicados pelos modelos e redes para estas mesmas composições.

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 Porcelana para isoladores elétricos

4.1.1 Caracterização das matérias-primas

Dez matérias-primas nacionais de uso industrial foram escolhidas para compor as misturas deste sistema, conforme apresentadas no capítulo 3. A Tabela 14 apresenta a análise química por fluorescência de raios X. Ressalta-se que F representa “Fundente”, R representa “Refratário” e P representa “Plástico”.

Tabela 14 Análise química das matérias-primas para porcelana elétrica.

| Matéria-prima | Composição expressa em óxidos (%) | | | | | | | | | | |
|---------------|-----------------------------------|--------------------------------|-------------------|------------------|------|------|--------------------------------|------|------------------|-------------------------------|-------|
| | SiO ₂ | Al ₂ O ₃ | Na ₂ O | K ₂ O | CaO | MgO | Fe ₂ O ₃ | MnO | TiO ₂ | P ₂ O ₅ | P.F.* |
| I-F1 | 65,78 | 17,92 | 3,34 | 11,50 | 0,09 | 0,02 | 0,09 | 0,00 | 0,02 | 0,00 | 0,45 |
| I-R1 | 0,09 | 99,34 | 0,41 | 0,01 | 0,04 | 0,02 | 0,08 | 0,00 | 0,01 | 0,00 | 0,00 |
| I-P1 | 60,76 | 23,84 | 0,05 | 3,22 | 0,19 | 1,03 | 2,06 | 0,01 | 1,01 | 0,15 | 7,67 |
| I-P2 | 64,10 | 20,77 | 0,08 | 4,01 | 0,19 | 1,06 | 2,46 | 0,01 | 1,06 | 0,12 | 6,15 |
| I-P3 | 59,07 | 24,25 | 0,07 | 3,04 | 0,07 | 1,36 | 2,88 | 0,01 | 0,84 | 0,16 | 8,26 |
| I-P4 | 68,91 | 18,51 | 0,01 | 1,15 | 0,08 | 0,60 | 1,75 | 0,00 | 1,33 | 0,00 | 7,66 |
| I-P5 | 59,35 | 21,82 | 3,33 | 0,48 | 1,46 | 3,52 | 1,21 | 0,01 | 0,29 | 0,07 | 7,69 |
| I-P6 | 45,16 | 37,58 | 0,02 | 0,85 | 0,01 | 0,06 | 2,61 | 0,00 | 0,36 | 0,05 | 13,20 |
| I-P7 | 48,83 | 35,04 | 0,06 | 1,90 | 0,02 | 0,27 | 1,47 | 0,02 | 0,35 | 0,02 | 12,02 |
| I-P8 | 46,85 | 36,91 | 0,03 | 1,23 | 0,01 | 0,04 | 0,47 | 0,00 | 0,09 | 0,00 | 13,85 |

* Perda ao fogo (1000°C por 30 min)

O material fundente I-F1 é industrialmente conhecido como um feldspato potássico pelo elevado teor de K₂O em relação aos outros óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos.

O material refratário I-R1 é caracterizado por alumina (Al₂O₃) de elevada pureza, contendo pequenas contaminações, principalmente Na₂O.

Os materiais plásticos I-P1, I-P2 e I-P3 são de identidade química parecidas, porém diferenciando-se principalmente no teor de Fe₂O₃ que altera principalmente a fusibilidade.

O material plástico I-P4 é uma argila caulínica, de baixa fusibilidade, pois possui baixos teores de óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos.

O material plástico I-P5 é conhecido por “bentonita”, uma argila que deve conter o mineral montmorilonita, com teores relativamente elevados de MgO, CaO e Na₂O, tornando-a de alta fusibilidade.

Os materiais plásticos I-P6, I-P7 e I-P8 são identificados como caulim de aspecto vermelho passante em peneira 200 mesh, caulim de aspecto branco passante em peneira 200 mesh e caulim de aspecto branco passante em peneira 325 mesh, respectivamente. Possuem baixos teores de óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos e baixíssima fusibilidade.

A caracterização física quanto às principais propriedades de uso industrial destes dez materiais é apresentada na Tabela 15.

Tabela 15 Principais propriedades físicas das matérias-primas para porcelana elétrica.

| Matéria-prima | Propriedades a cru | | Queima a 1160°C | | | Queima a 1180°C | | |
|---------------|-------------------------------|---------------------------------|--------------------------|---------------------|----------------------|--------------------------|---------------------|----------------------|
| | Dap seco (g/cm ³) | RMF seco (kgf/cm ²) | Dap (g/cm ³) | Retração Linear (%) | Absorção de água (%) | Dap (g/cm ³) | Retração Linear (%) | Absorção de água (%) |
| I-F1 | 1,556 | * | 2,602 | 6,89 | 12,5 | 2,614 | 11,61 | 3,9 |
| I-P1 | 1,700 | 18,4 | 1,794 | 13,46 | 0,28 | 2,123 | 13,54 | 0,09 |
| I-P2 | 1,706 | 21,7 | 1,868 | 13,34 | 0,09 | 1,937 | 13,34 | 0,09 |
| I-P3 | 1,714 | 16,3 | 1,742 | 13,82 | 0,09 | 1,803 | 13,62 | 0,05 |
| I-P4 | 1,867 | 27,4 | 2,044 | 4,78 | 10,8 | 2,112 | 5,3 | 10,29 |
| I-P6 | 1,737 | 19,2 | 2,399 | 3,91 | 18,56 | 2,367 | 4,67 | 16,98 |
| I-P7 | 1,76 | 15,5 | 2,039 | 6,73 | 10,47 | 2,067 | 7,6 | 8,66 |
| I-P8 | 1,686 | 8,4 | 2,434 | 3,44 | 21,44 | 2,404 | 4,33 | 20,21 |

* Extrema influência do aditivo necessário para conformação.

A caracterização da densidade a seco dos materiais, mostra a contribuição de cada um para o empacotamento da mistura, sendo maior para os materiais mais plásticos devido à própria natureza plástica, uma vez que a pressão de compactação é mantida constante para todos os materiais. O material I-P4 é o que melhor densifica, ao contrário do material I-F1 (rochoso).

A resistência mecânica a seco de cada material, analisada separadamente também indica a contribuição de cada material para a resistência a seco da mistura, sendo função da distribuição do tamanho de partículas, mineralogia e contaminações (ex.: compostos orgânicos, teor de areia, etc.) de cada material. Novamente o material I-P4 apresenta maior valor. O material I-F1, por ser rochoso e não plástico, não retém forma sem o uso de

aditivo ligante o qual seria o único responsável pela resistência mecânica da mistura I-F1 e ligante. Logo, não é prudente realizar análise da resistência mecânica a seco deste material.

A caracterização quanto às propriedades de queima dos materiais analisados separadamente não indica necessariamente que o comportamento da mistura será uma função direta do comportamento de cada um, pois a energia térmica fornecida aos materiais durante a queima pode ser suficiente para promover alteração das fases e conseqüentemente das propriedades. Pode-se utilizar a Figura 2 como exemplo, onde um feldspato potássico puro transforma-se do estado sólido para o estado líquido (fusão) a partir de $\sim 1600^{\circ}\text{C}$ e quando presente em mistura com sílica e alumina, a fusão ocorre a partir de 1140°C devido à formação de um eutético em função da composição química e da energia térmica. Desta forma, a caracterização isolada de um material classificado como fundente para misturas triaxiais, pode apresentar fusibilidade (fusão e fluxo viscoso) em temperatura mais elevada do que outros materiais, porém, quando em mistura contribui para formação de eutéticos.

A realização da caracterização de propriedades de queima em duas temperaturas proporciona a avaliação da evolução do comportamento de cada material em função temperatura, sendo possível identificar a estabilidade dos materiais. O material I-F1 apresenta a menor estabilidade em função da temperatura, porém não é o material mais fundente quando analisado separadamente.

4.1.2 Caracterização das misturas

Após processamento e ensaios para determinação das propriedades escolhidas, conforme especificado no capítulo 3, apresentam-se nas Tabelas 16 e 17 os resultados para as misturas resultantes do planejamento experimental.

Primeiramente apresentam-se os resultados para as propriedades de densidade aparente a seco, resistência mecânica a flexão pós-queima e flecha de deformação pirolástica, conforme Tabela 16.

Tabela 16 Resultados das misturas processadas para porcelana elétrica.

| Mistura | DAP seco (g/cm ³) | RMF pós-queima * (kgf/cm ²) | Flecha * (mm) |
|---------|----------------------------------|--|------------------|
| 1 | 2,14 | 1027,5 | 4,80 |
| 1 | 2,17 | 1032,1 | 4,20 |
| 2 | 2,07 | 1087,8 | 3,80 |
| 2 | 2,11 | 1110,4 | 5,40 |
| 3 | 2,22 | 948,7 | 4,30 |
| 3 | 2,20 | 938,4 | 4,00 |
| 4 | 2,25 | 1312,1 | 16,90 |
| 4 | 2,25 | 1331,2 | 17,80 |
| 5 | 2,20 | 689,9 | 3,20 |
| 5 | 2,16 | 773,6 | 4,10 |
| 6 | 2,13 | 828,6 | 17,90 |
| 7 | 2,31 | 1181,1 | 5,70 |
| 8 | 2,23 | 1065,0 | 7,90 |
| 9 | 2,23 | 1114,9 | 4,30 |
| 10 | 2,25 | 1110,2 | 18,40 |
| 11 | 2,17 | 856,3 | 4,80 |
| 12 | 2,18 | 819,2 | 4,20 |
| 13 | 2,18 | 1090,3 | 17,70 |
| 14 | 2,19 | 875,8 | 4,70 |
| 15 | 2,33 | 938,5 | 4,10 |

* Corpos-de-prova obtidos com tratamento térmico a 1240°C.

Nota-se repetibilidade para os resultados das misturas replicadas, indicando confiabilidade para os resultados das demais misturas.

As principais propriedades de queima das misturas são apresentadas na Tabela 17.

Tabela 17 Retração linear de queima e absorção de água em função da temperatura para porcelana elétrica.

| Mistura | Retração Linear de Queima (%) | | | | Absorção de Água (%) | | | | Densidade Aparente pós-queima (g/cm ³) | | | |
|---------|-------------------------------|---------|---------|---------|----------------------|---------|---------|---------|--|---------|---------|---------|
| | 1180 °C | 1200 °C | 1220 °C | 1240 °C | 1180 °C | 1200 °C | 1220 °C | 1240 °C | 1180 °C | 1200 °C | 1220 °C | 1240 °C |
| 1 | 8,05 | 8,28 | 9,01 | 8,75 | 1,94 | 1,64 | 0,64 | 0,60 | 2,63 | 2,64 | 2,68 | 2,68 |
| 1 | 7,89 | 8,10 | 8,87 | 8,49 | 2,36 | 1,97 | 1,65 | 1,37 | 2,66 | 2,68 | 2,71 | 2,70 |
| 2 | 9,74 | 10,42 | 10,66 | 10,05 | 0,64 | 0,23 | 0,28 | 0,23 | 2,66 | 2,69 | 2,69 | 2,69 |
| 2 | 9,08 | 9,46 | 9,86 | 9,69 | 0,82 | 0,82 | 0,32 | 0,27 | 2,65 | 2,68 | 2,70 | 2,69 |
| 3 | 7,49 | 7,68 | 8,39 | 8,23 | 2,60 | 2,41 | 1,47 | 1,36 | 2,67 | 2,68 | 2,72 | 2,72 |
| 3 | 7,53 | 8,09 | 7,92 | 8,20 | 2,70 | 1,93 | 2,69 | 1,78 | 2,65 | 2,69 | 2,66 | 2,70 |
| 4 | 7,44 | 7,92 | 10,48 | 7,99 | 0,44 | 0,53 | 0,00 | 0,00 | 2,73 | 2,77 | 2,79 | 2,76 |
| 4 | 7,48 | 7,97 | 8,39 | 7,95 | 0,48 | 0,00 | 0,00 | 0,04 | 2,75 | 2,79 | 2,80 | 2,78 |
| 5 | 5,14 | 5,63 | 5,89 | 6,41 | 5,44 | 4,42 | 4,02 | 3,06 | 2,47 | 2,53 | 2,54 | 2,58 |
| 5 | 4,84 | 5,54 | 6,57 | 6,34 | 6,28 | 5,18 | 3,91 | 3,78 | 2,42 | 2,48 | 2,53 | 2,53 |
| 6 | 8,90 | 8,59 | 6,86 | 5,08 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,36 | 2,69 | 2,68 | 2,51 | 2,38 |
| 7 | 6,35 | 6,85 | 7,37 | 7,65 | 1,60 | 0,71 | 0,22 | 0,04 | 2,71 | 2,75 | 2,79 | 2,82 |
| 8 | 6,82 | 7,39 | 7,90 | 7,90 | 2,11 | 0,81 | 0,77 | 0,27 | 2,66 | 2,70 | 2,73 | 2,76 |
| 9 | 7,59 | 8,17 | 8,52 | 8,52 | 1,72 | 0,90 | 0,92 | 0,41 | 2,69 | 2,73 | 2,74 | 2,75 |
| 10 | 7,10 | 7,92 | 7,46 | 6,94 | 0,00 | 0,04 | 0,00 | 0,09 | 2,73 | 2,74 | 2,72 | 2,67 |
| 11 | 4,63 | 6,20 | 7,36 | 7,68 | 6,46 | 4,64 | 3,03 | 1,90 | 2,43 | 2,54 | 2,61 | 2,67 |
| 12 | 4,05 | 4,90 | 5,60 | 6,00 | 7,61 | 6,35 | 5,40 | 4,03 | 2,38 | 2,45 | 2,48 | 2,53 |
| 13 | 8,64 | 8,92 | 8,81 | 8,38 | 0,09 | 0,00 | 0,00 | 0,04 | 2,78 | 2,81 | 2,77 | 2,72 |
| 14 | 4,67 | 5,22 | 5,86 | 6,08 | 7,40 | 6,50 | 5,60 | 5,16 | 2,45 | 2,50 | 2,54 | 2,56 |
| 15 | 4,97 | 5,54 | 5,89 | 6,12 | 4,98 | 4,23 | 3,74 | 3,29 | 2,61 | 2,65 | 2,67 | 2,70 |

A análise da mudança das propriedades de queima pode ser realizada a partir da obtenção de um diagrama de gresificação ^[31] para cada mistura em estudo, o qual é composto pelas informações da Tabela 17, porém em forma gráfica como exemplificado para a mistura 1 na Figura 14.

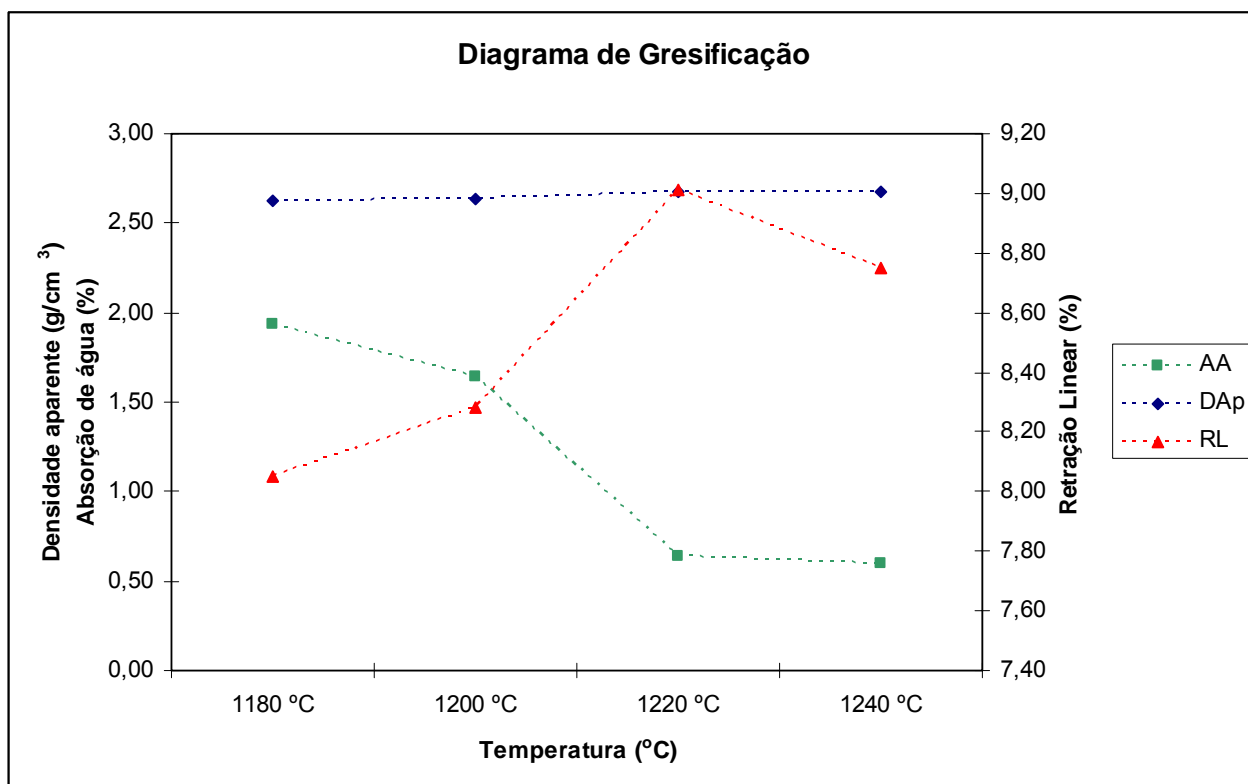


Figura 14 Diagrama de gresificação para mistura 1.

A partir do diagrama de gresificação define-se a temperatura na qual a mistura atinge a máxima densidade aliada à menor absorção de água. A estabilidade das propriedades frente à temperatura de queima também é avaliada mais facilmente nesta forma gráfica, sendo possível a quantificação da variação dimensional do corpo para cada temperatura a partir da retração linear.

Ao comparar os diagramas de gresificação para todas as misturas, extraindo a temperatura na qual a absorção aproxima-se de zero, a densidade é máxima e o intervalo de estabilidade dimensional, e relacionar estas informações com as composições da Tabela 4, é possível identificar qualitativamente a influência de cada componente sobre o comportamento da mistura.

Esta mesma análise, porém realizada de forma quantitativa pode ser obtida a partir do resultado da análise por regressão polinomial, onde se avalia separadamente o efeito de cada termo do polinômio (componente) sobre as propriedades de mistura em estudo.

4.1.3 Treinamento das redes neurais artificiais

Os conjuntos de dados compostos pelas formulações e por cada propriedade apresentada constituíram os valores de treinamento para as redes, executado conforme apresentado na seção 3.5. Uma rede foi constituída para cada propriedade, sendo definida em função do número de neurônios, número de iterações de treinamento e valor de λ em função do erro de previsão (e_p) obtido pela Equação 13.

$$e_p = \left| \frac{y - s}{y} \right| \times 100 \quad (13)$$

onde y é um resultado experimental e s é uma saída prevista pela rede.

Os valores para estes três parâmetros para cada rede foram definidos através de análise gráfica a partir da variação do número de neurônios em 8 níveis, número de iterações em 5 níveis e valor λ em 5 níveis, em função primeiramente do erro médio quadrático (Equação 2) e posteriormente pelo erro de previsão e_p . O menor valor de EMQ e de e_p definiram os parâmetros ótimos das redes.

Aumentar o número de neurônios de uma rede neural artificial usada como aproximador de uma função, corresponde a aumentar a capacidade da mesma de ajustar-se a relações mais complexas, pois assim aumenta-se o número de termos ajustáveis durante o treinamento.

O gráfico de EMQ em função do número de neurônios, apresentado na Figura 15 apresentou-se da mesma forma para todos os treinamentos e todas as propriedades estudadas. Este comportamento deve-se ao fato de que o número de entradas e saídas apresentadas a todas as redes é o mesmo (15 formulações e respectivas propriedades). Cinco replicações para cada ponto do gráfico determinaram o desvio padrão associado.

O número de iterações e o valor λ não modificam o gráfico da Figura 21. Logo, determina-se que as redes aprendem a relação entre formulação e propriedade caso sejam compostas de no mínimo 14 neurônios.

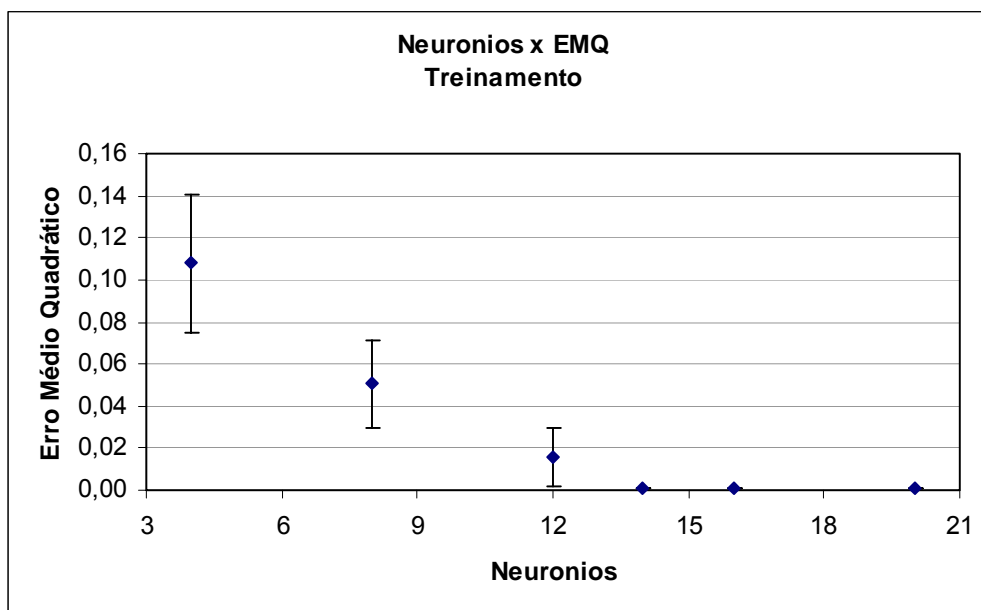


Figura 15 EMQ em função do número de neurônios. Treinamento com cinco iterações.

O erro de previsão, para formulações não contidas no conjunto de treinamento, em função do número de neurônios tem um comportamento característico para cada propriedade em estudo, uma vez que a complexidade da relação existente entre formulações cerâmicas e respectivas propriedades depende principalmente das transformações de fases e propriedades associadas a estas transformações. Logo, as relações em estudo são melhor ajustadas por um número de neurônios que corresponda a complexidade de cada uma.

Em geral, não é possível afirmar que há uma relação direta entre o número de iterações, o parâmetro λ e o erro de previsão, pois, para nenhuma propriedade foi observada variação do erro de previsão em função dos cinco níveis testados para cada parâmetro.

As Figuras de 16 a 24 apresentam os gráficos contendo a relação entre o número de neurônios e o erro de previsão para cada propriedade em estudo, sendo relativas a cinco formulações não contidas no conjunto de treinamento e apresentadas na Tabela 18.

Tabela 18 Formulações de verificação.

| Matérias-primas | Formulações (% em peso) | | | | |
|-----------------|-------------------------|----|----|----|----|
| | A | B | C | D | E |
| R1 | 40 | 41 | 41 | 41 | 41 |
| F1 | 20 | 20 | 20 | 17 | 20 |
| P2 | 20 | 0 | 0 | 0 | 5 |
| P8 | 0 | 19 | 17 | 18 | 12 |
| P6 | 20 | 20 | 22 | 24 | 22 |

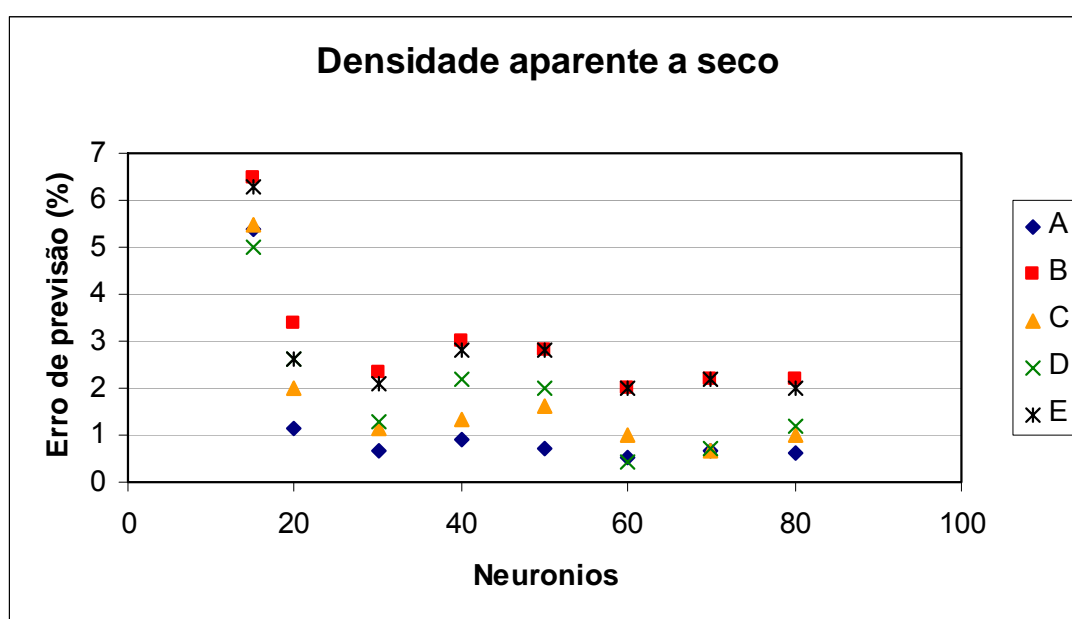


Figura 16 Neurônios e e_p para densidade aparente a seco. $\bar{e}_p = 1,2\%$ com 60 neurônios.

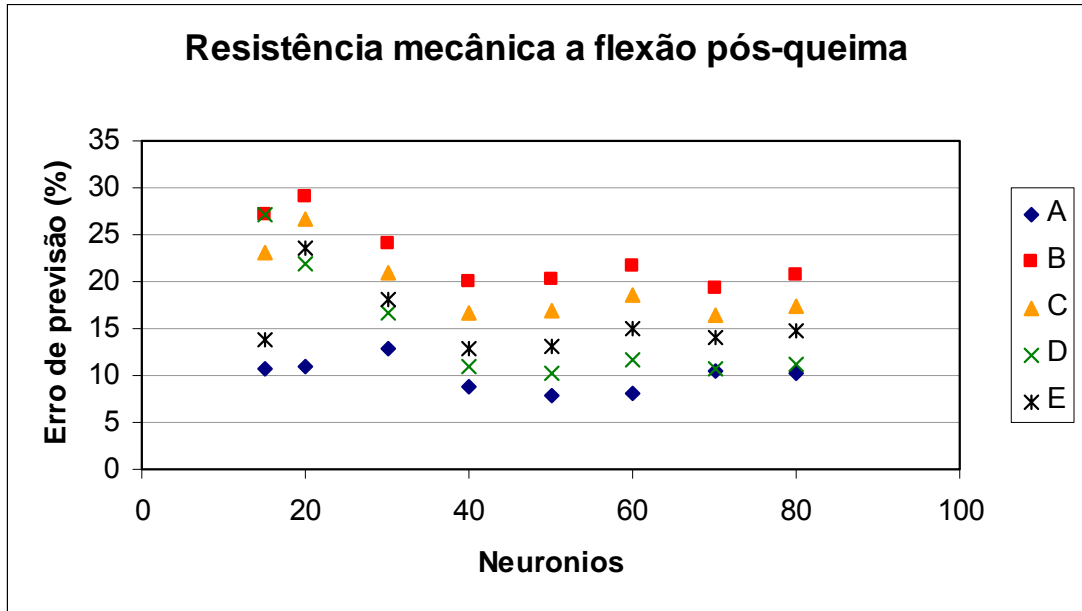


Figura 17 Neurônios e e_p para resistência mecânica a flexão pós-queima. $\bar{e}_p = 14,2\%$ com 70 neurônios.

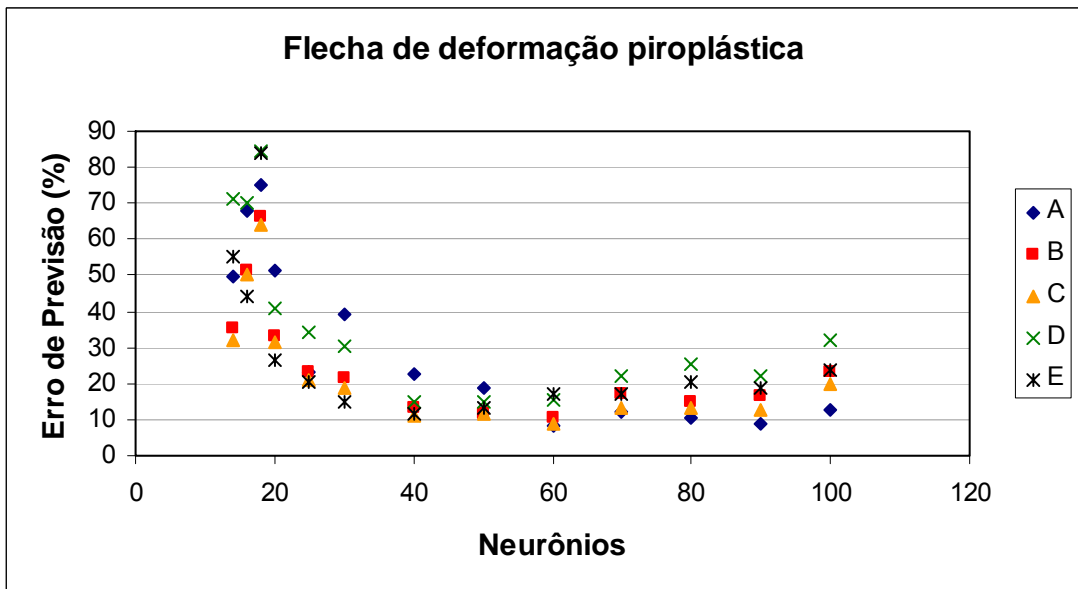


Figura 18 Neurônios e e_p para flecha de deformação piropilástica. $\bar{e}_p = 12,0\%$ com 60 neurônios.

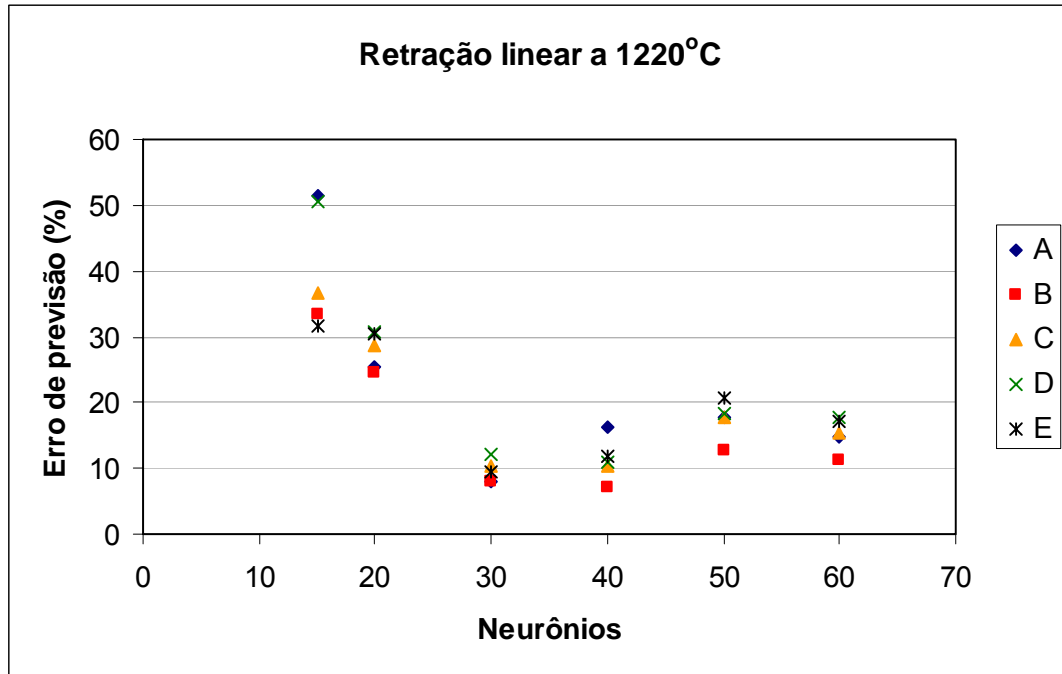


Figura 19 Neurônios e e_p para retração linear a 1220°C. $\bar{e}_p = 9,6\%$ com 30 neurônios.

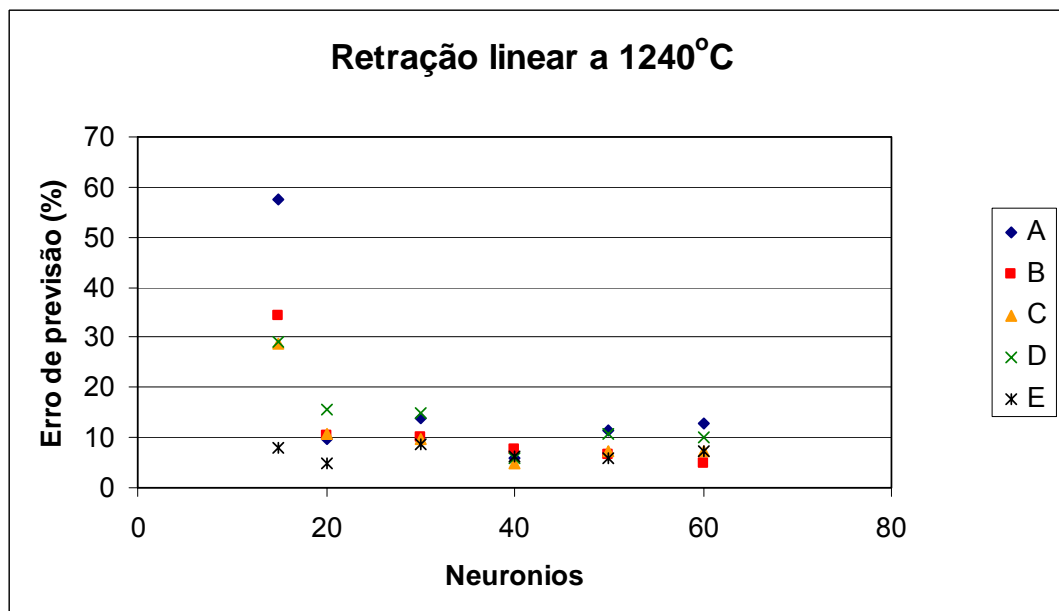


Figura 20 Neurônios e e_p para retração linear a 1240°C. $\bar{e}_p = 6,1\%$ com 40 neurônios.

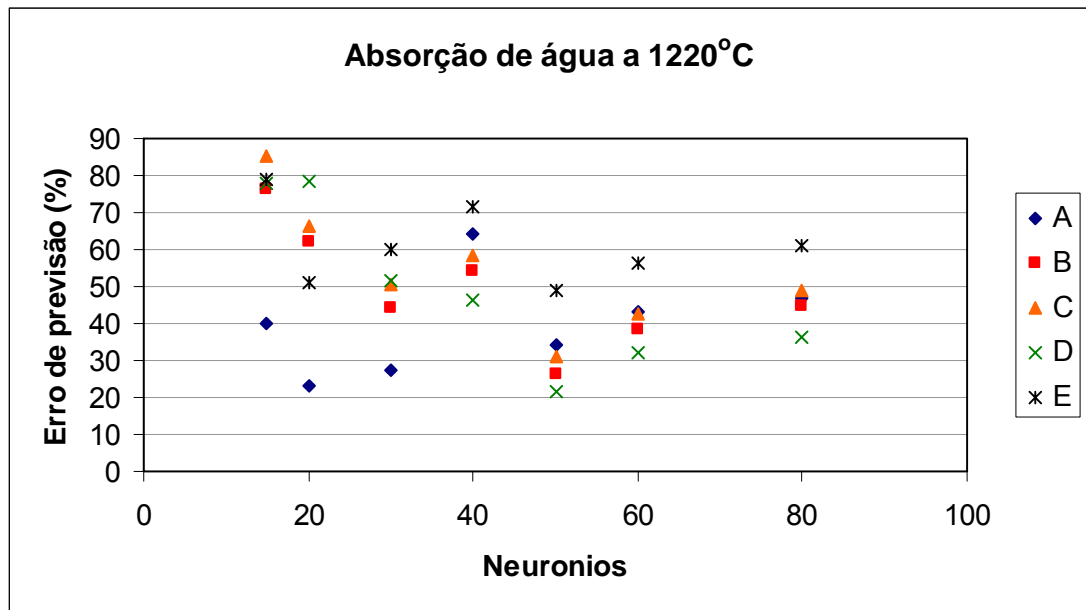


Figura 21 Neurônios e e_p para absorção de água a 1220°C. $\bar{e}_p = 32,3\%$ com 50 neurônios.

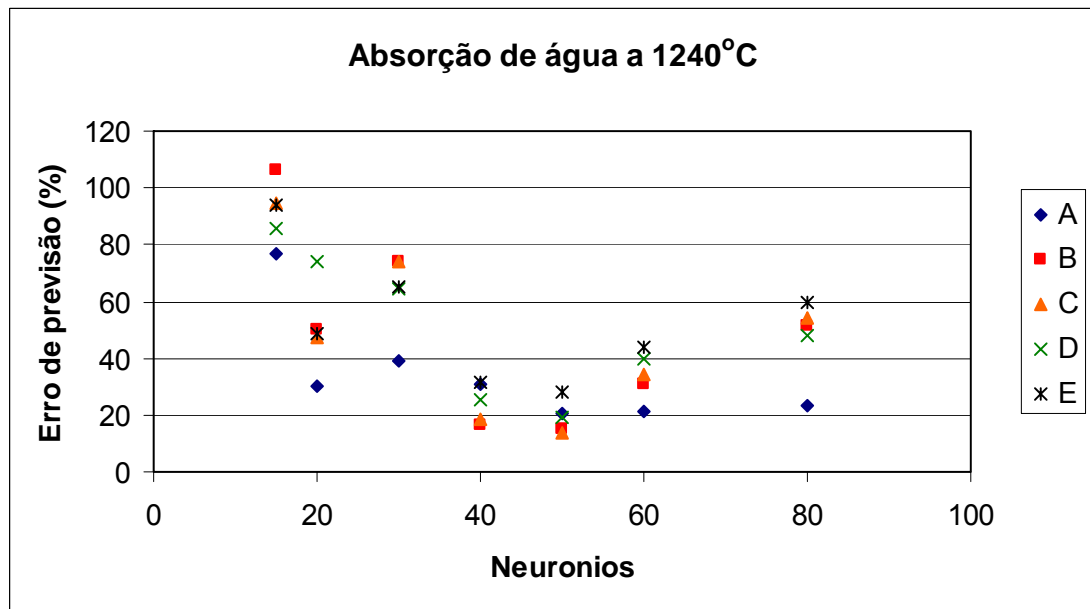


Figura 22 Neurônios e e_p para absorção de água a 1240°C. $\bar{e}_p = 19,4\%$ com 50 neurônios.

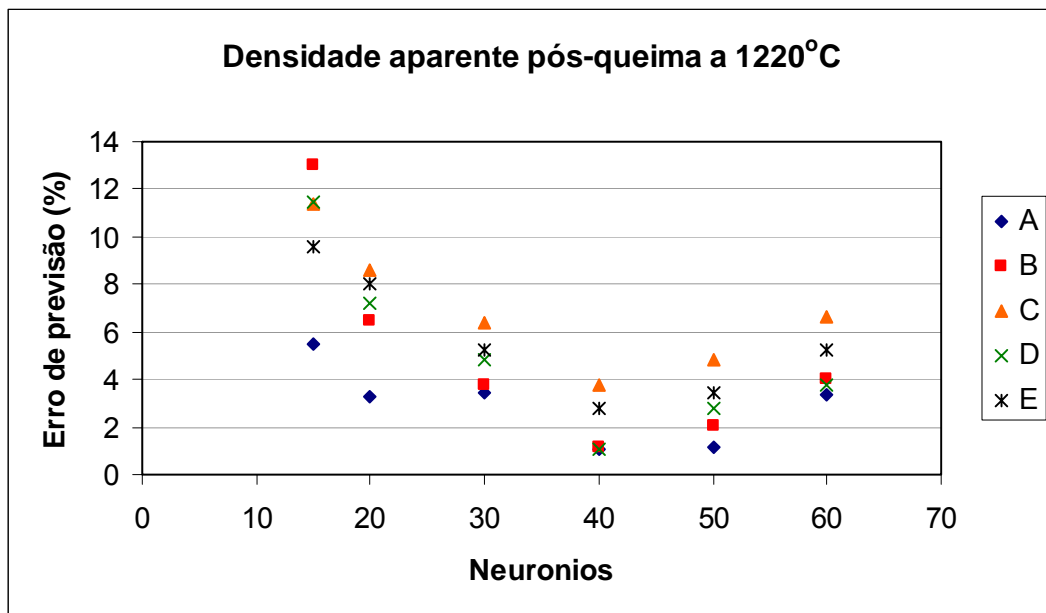


Figura 23 Neurônios e e_p para densidade aparente pós-queima a 1220°C. $\bar{e}_p = 2,0\%$ com 40 neurônios.

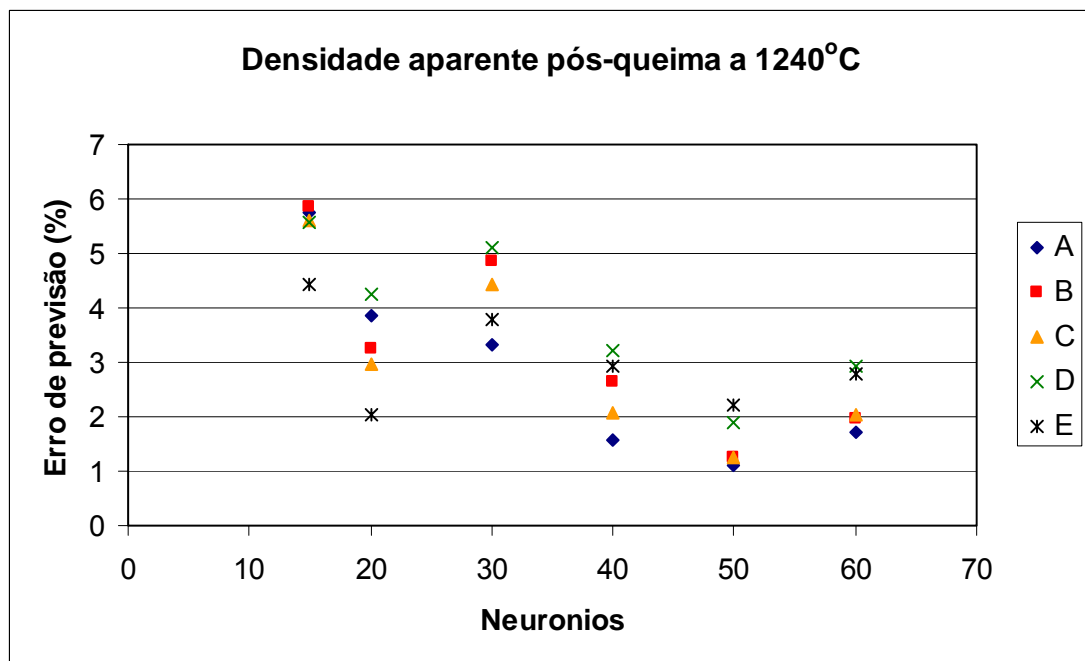


Figura 24 Neurônios e e_p para densidade aparente pós-queima a 1240°C. $\bar{e}_p = 1,5\%$ com 50 neurônios.

Para todos os gráficos das Figuras 16 a 24 nota-se que os erros relativos das respostas em função do número de neurônios das redes para as cinco composições seguem as mesmas tendências, indicando que ocorre generalização da relação entre formulação e propriedades. Se esta relação não fosse compreendida pelas redes, o erro relativo às composições seguiria tendências diferentes.

Erros de previsão entre 0 e 10% foram encontrados para as propriedades de densidade aparente a seco, retração linear pós-queima e densidade aparente pós-queima, sendo o menor erro de valor médio igual a 1,2% para a propriedade de densidade aparente a seco. Para estas propriedades houve bom aprendizado e generalização.

Erros de previsão entre 10 e 20% foram encontrados para as propriedades de resistência mecânica a flexão pós-queima e flecha. O maior erro de previsão foi para a propriedade de absorção de água a 1220°C. Para estas propriedades houve bom aprendizado, porém a generalização não ocorreu de forma a garantir previsões com baixo nível de erro.

O desvio padrão associado a cada ponto de cada gráfico foi obtido através de cinco replicações e está analisado comparativamente com o modelo resultante da regressão linear no sub-capítulo 4.1.5.

4.1.4 Ajuste Polinomial

Os mesmos dados utilizados para treinamento das redes foram interpretados pelo método de análise por regressão polinomial, onde se constituem modelos para cada propriedade em análise. O coeficiente de determinação múltipla (R^2) e o coeficiente de significância (P) para modelos lineares são apresentados na Tabela 19 e para modelos de segunda ordem (interação) são apresentados na Tabela 20.

Tabela 19 Coeficientes de determinação e significância dos modelos lineares para propriedades de porcelana elétrica.

| Propriedade | | R ² | P |
|---------------------------------|--------|----------------|--------|
| Densidade Aparente a seco | | 0,882 | 0,0014 |
| Resistência Mecânica Pós-queima | | 0,584 | 0,2495 |
| Flecha | | 0,993 | 0,0000 |
| Absorção de Água | 1220°C | 0,720 | 0,0591 |
| | 1240°C | 0,688 | 0,0897 |
| Retração Linear de Queima | 1220°C | 0,389 | 0,6927 |
| | 1240°C | 0,417 | 0,6300 |
| Densidade Aparente Pós-queima | 1220°C | 0,484 | 0,4713 |
| | 1240°C | 0,406 | 0,6563 |

Através de P (<5%) e R² (~1) é possível definir que modelos lineares ajustam-se bem apenas para as relações entre o teor de cada componente e as propriedades de densidade aparente a seco e flecha. Para as demais propriedades não há bom ajuste linear.

Estes modelos assumem a forma genérica apresentada na equação 14.

$$Prop = A.I-F1 + B.I-R1 + C.I-P1 + D.I-P2 + E.I-P3 + F.I-P4 + G.I-P5 + H.I-P6 + I.P7 + J.I-P8 \quad (14)$$

Onde “Prop” significa uma propriedade, “A a J” são coeficientes lineares e “I-F1 a I-P8” são teores dos componentes.

Tabela 20 Coeficientes de determinação e significância dos modelos de segunda ordem para propriedades de porcelana elétrica.

| Propriedade | | R ² | P |
|---------------------------------|--------|----------------|--------|
| Densidade Aparente a seco | | 0,882 | 0,0014 |
| Resistência Mecânica Pós-queima | | 0,974 | 0,0000 |
| Flecha | | 0,993 | 0,0000 |
| Absorção de Água | 1220°C | 0,947 | 0,0001 |
| | 1240°C | 0,945 | 0,0001 |
| Retração Linear de Queima | 1220°C | 0,787 | 0,0084 |
| | 1240°C | 0,949 | 0,0001 |
| Densidade Aparente Pós-queima | 1220°C | 0,948 | 0,0001 |
| | 1240°C | 0,958 | 0,0001 |

Devido a falta de ajuste linear anteriormente descrita, efetuou-se ajustes com modelos de segunda ordem que consideram a interação entre os materiais mais fundetens

(I-F1, I-P1, I-P2 e I-P3), havendo melhora indicada pela elevação dos valores de R^2 e redução dos valores de P em comparação com os resultados da Tabela 19.

Estes modelos assumem a forma genérica apresentada na equação 15.

$$Prop = A.I-F1 + B.I-R1 + C.I-P1 + D.I-P2 + E.I-P3 + F.I-P4 + G.I-P5 + H.I-P6 + I-P7 + J.I-P8 + (K.I-P1.I-F1 + L.I-P2.I-F1 + M.I-P3.I-F1) \quad (15)$$

Onde “*Prop*” significa uma propriedade, “A a J” são coeficientes lineares, “K a M” são coeficiente de segunda ordem e “I-F1 a I-P8” são teores dos componentes.

4.1.5 Verificação da capacidade preditiva dos modelos

Através de comparação por análise gráfica, contendo os valores obtidos experimentalmente para cada propriedade em estudo e os valores previstos pelos modelos polinomiais de segunda ordem e pelas redes neurais, é possível verificar a capacidade preditiva dos modelos.

As Figuras de 25 a 33 apresentam os gráficos para verificação da capacidade preditiva dos modelos, sendo o desvio padrão associado a cada ponto previsto pelas redes neurais obtido através de cinco replicações.

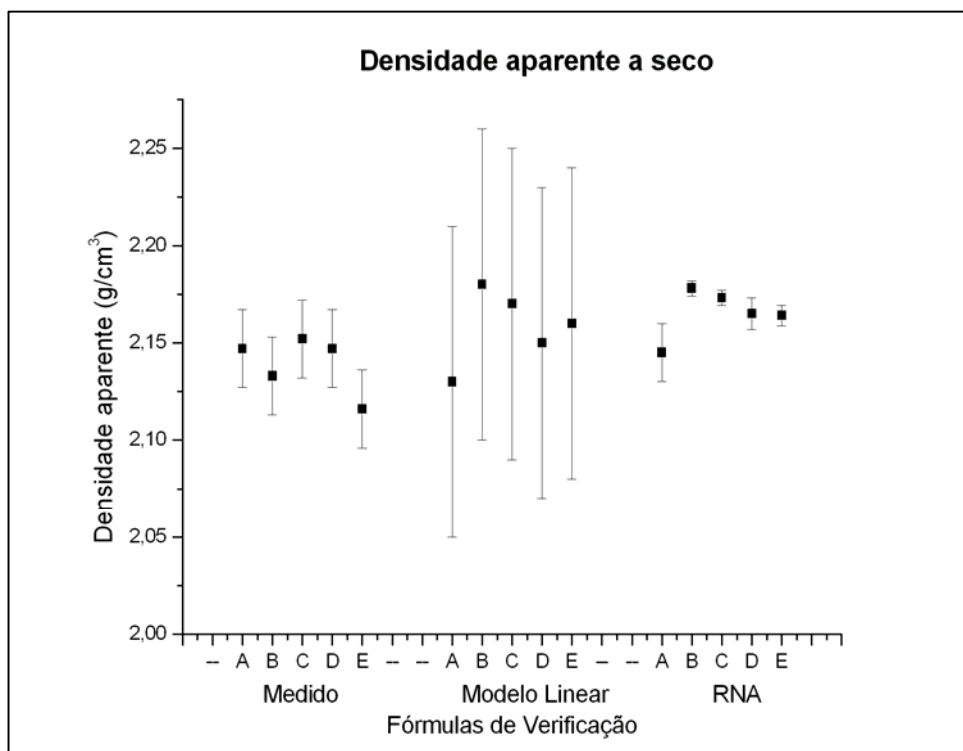


Figura 25 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a seco.

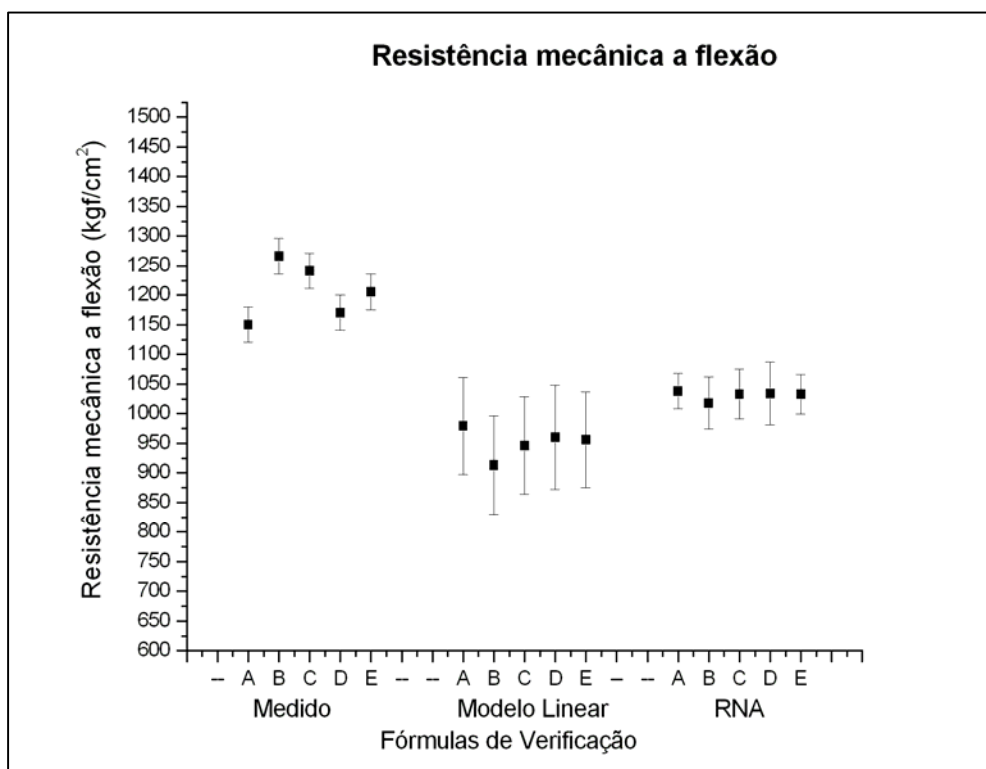


Figura 26 Verificação da capacidade preditiva de resistência mecânica a flexão a seco.

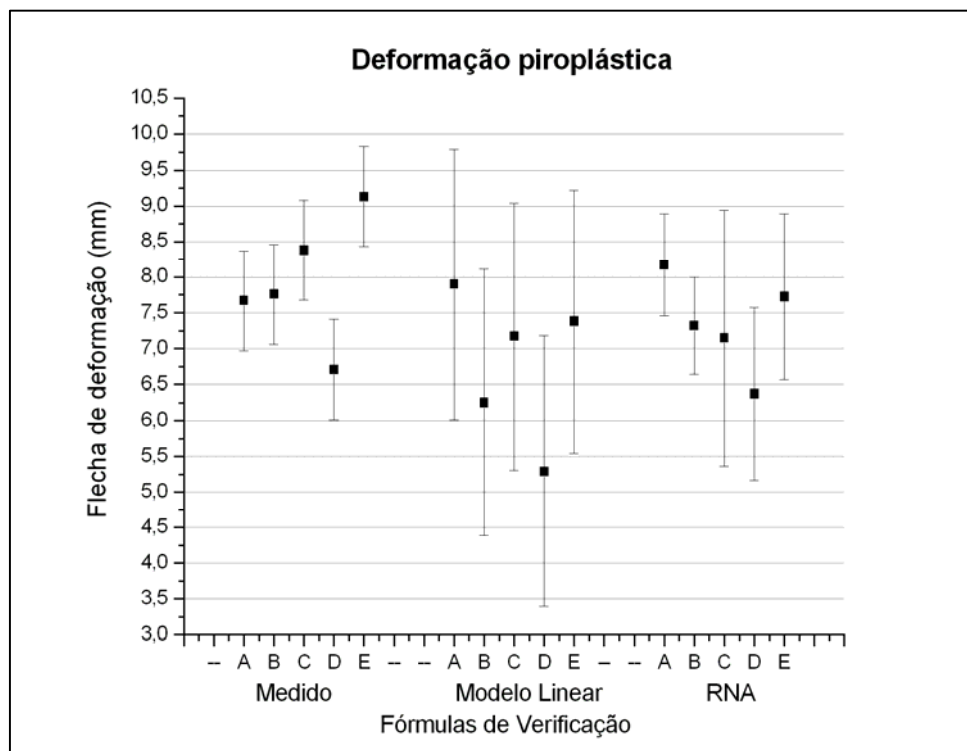


Figura 27 Verificação da capacidade preditiva de flecha de deformação pirolástica.

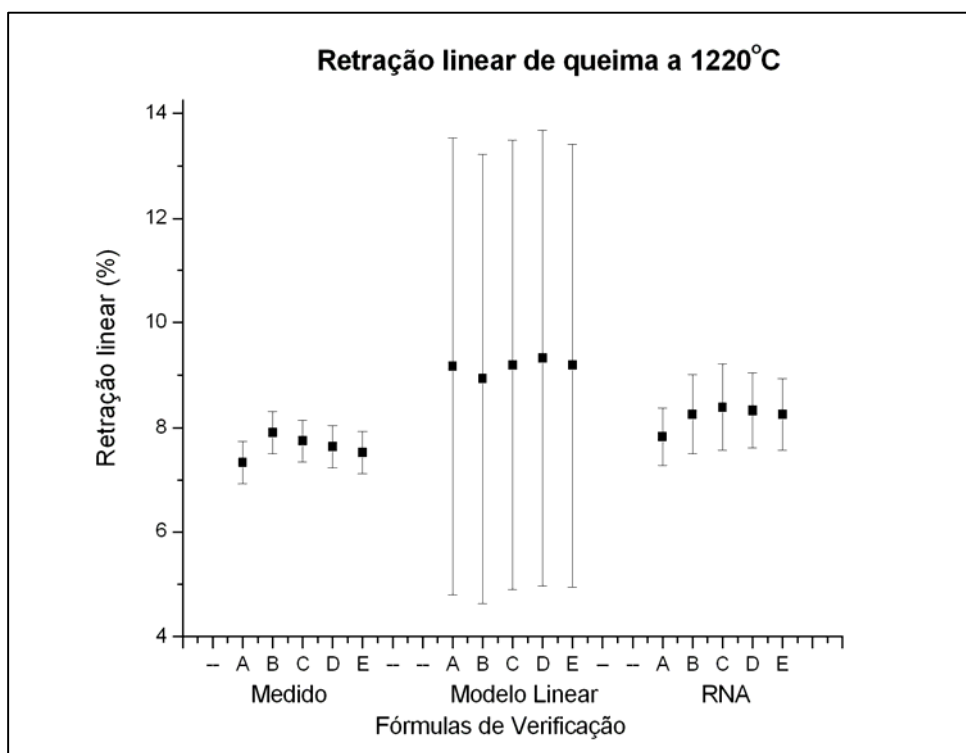


Figura 28 Verificação da capacidade preditiva de retração linear a 1220°C.

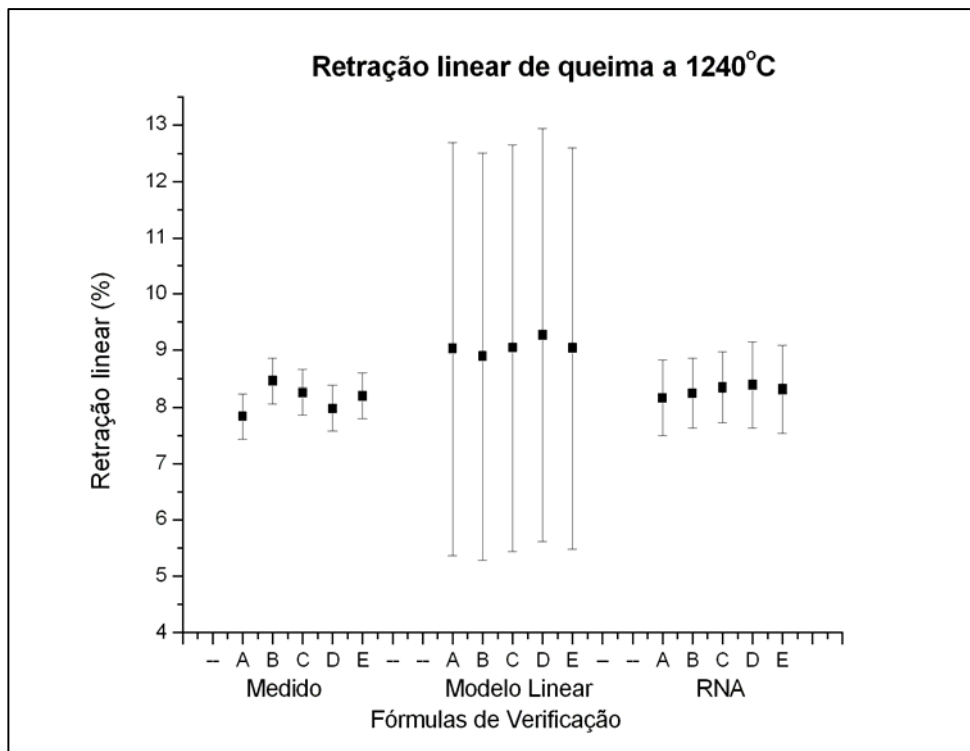


Figura 29 Verificação da capacidade preditiva de retração linear a 1240°C.

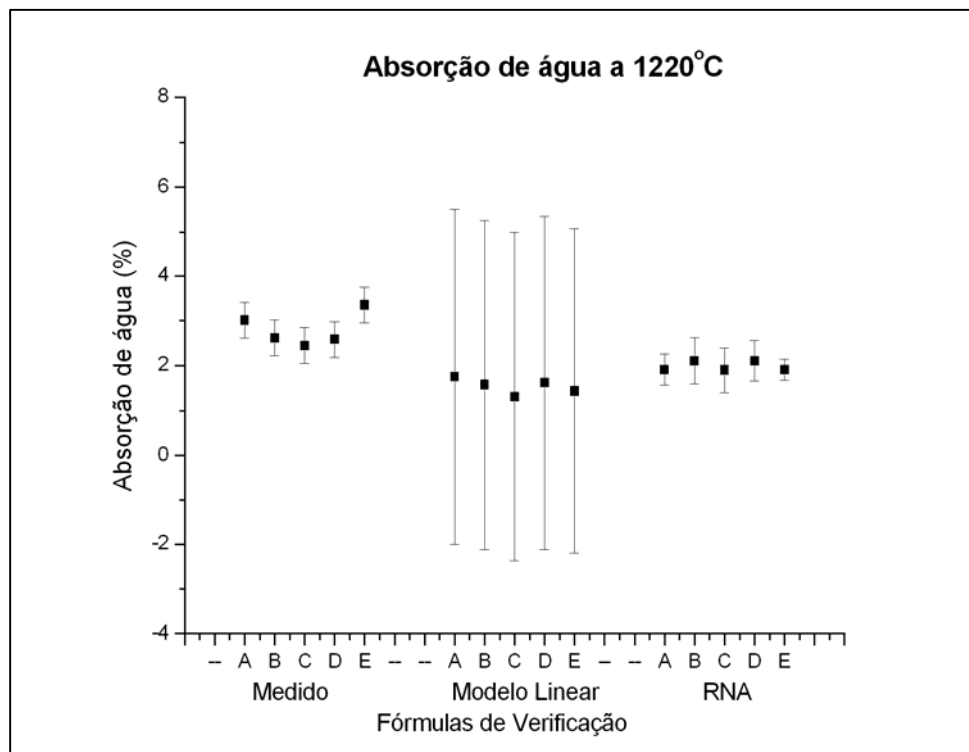


Figura 30 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água a 1220°C.

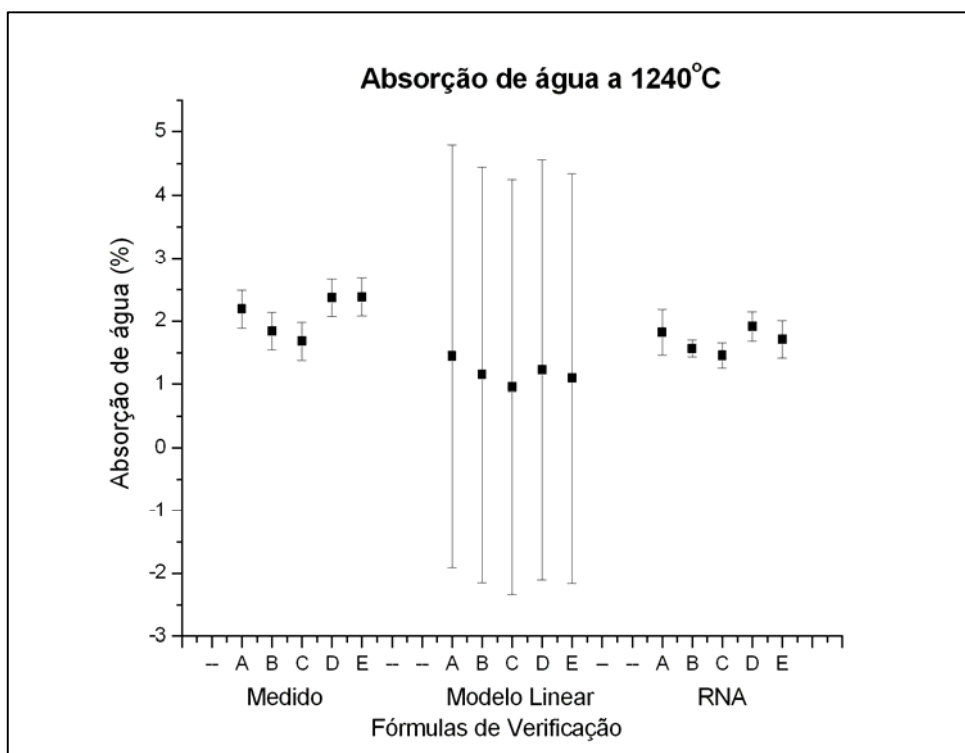


Figura 31 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água a 1240°C

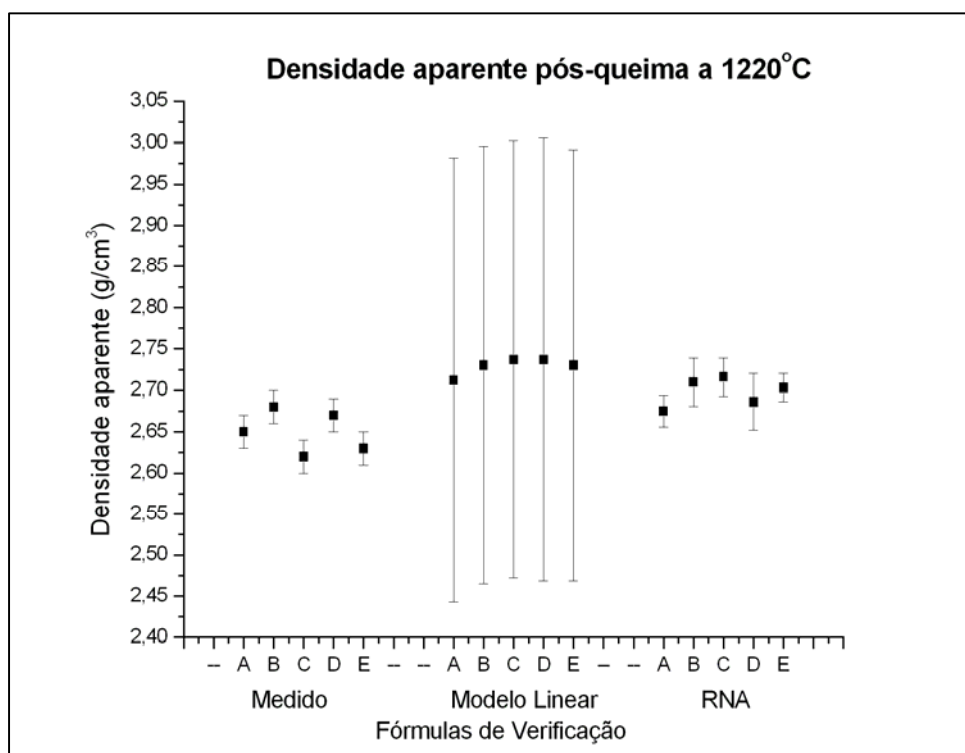


Figura 32 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a 1220°C.

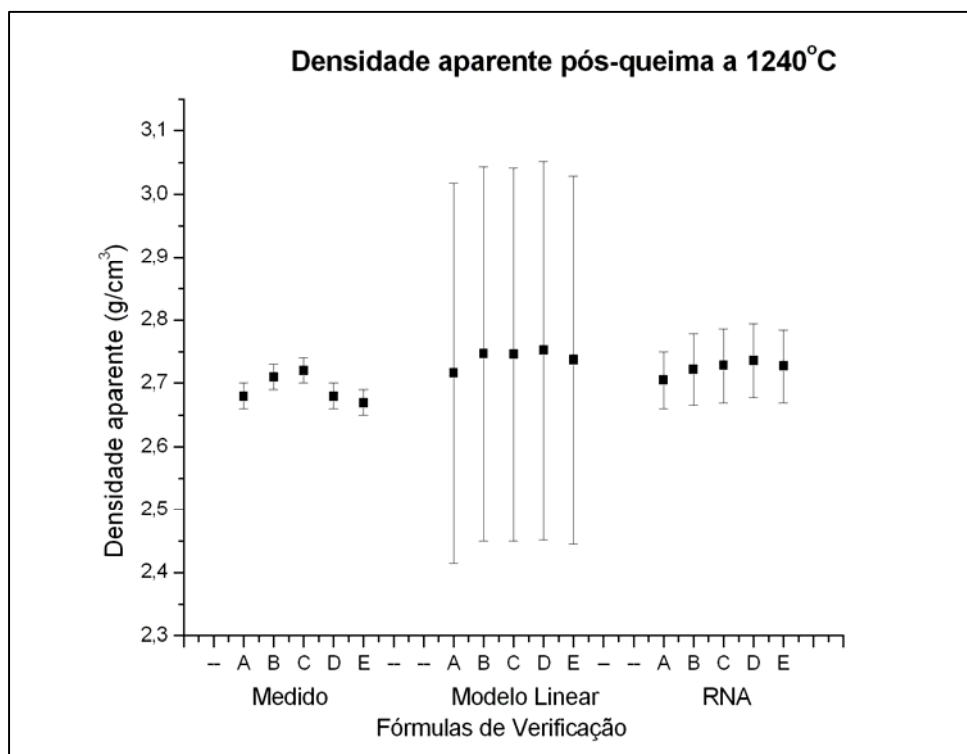


Figura 33 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a 1240°C.

Para todas as propriedades, nota-se que o desvio padrão da previsão do modelo linear é sempre maior que os desvios padrões dos resultados medidos e previstos pelas redes neurais artificiais.

4.2 Porcelanato

4.2.1 Caracterização das matérias-primas

Dez matérias-primas nacionais de uso industrial foram escolhidas para compor as misturas deste sistema, conforme apresentadas em função da denominação na Tabela 6 e em função da análise química na Tabela 20. Ressalta-se que F representa “Fundente” e P representa “Plástico”. Nota-se que não é utilizada matéria-prima designada por “R” (refratário), pois neste sistema o componente refratário estrutural SiO_2 está presente na forma de quartzo livre misturado naturalmente às matérias-primas plásticas.

Tabela 20 Análise química das matérias-primas para porcelanato.

| Matéria-prima | Composição expressa em óxidos (%) | | | | | | | | | | |
|---------------|-----------------------------------|-------------------------|-----------------------|----------------------|--------------|--------------|-------------------------|--------------|----------------|------------------------|-------|
| | SiO_2 | Al_2O_3 | Na_2O | K_2O | CaO | MgO | Fe_2O_3 | MnO | TiO_2 | P_2O_5 | P.F.* |
| P-F1 | 68,18 | 12,72 | 6,80 | 0,72 | 3,50 | 2,32 | 0,20 | 0,01 | 0,06 | 0,06 | 5,52 |
| P-F2 | 75,33 | 15,57 | 7,91 | 0,38 | 0,66 | 0,15 | 0,08 | 0,00 | 0,05 | 0,02 | 0,73 |
| P-F3 | 72,06 | 1,60 | 0,00 | 0,31 | 0,15 | 20,79 | 0,68 | 0,13 | 0,10 | 0,02 | 4,28 |
| P-F4 | 64,69 | 22,48 | 0,32 | 5,99 | 0,16 | 0,51 | 0,88 | 0,01 | 0,82 | 0,04 | 4,11 |
| P-P1 | 64,04 | 22,20 | 0,06 | 0,82 | 0,04 | 0,52 | 1,53 | 0,01 | 1,99 | 0,05 | 8,80 |
| P-P2 | 57,09 | 26,64 | 0,02 | 0,15 | 0,10 | 0,12 | 0,88 | 0,00 | 2,42 | 0,06 | 13,96 |
| P-P3 | 61,00 | 24,61 | 0,05 | 0,35 | 0,12 | 1,46 | 0,89 | 0,01 | 1,42 | 0,08 | 9,49 |
| P-P4 | 64,54 | 18,20 | 2,39 | 0,53 | 1,37 | 3,93 | 1,39 | 0,01 | 0,23 | 0,04 | 6,57 |
| P-P5 | 53,49 | 32,03 | 0,02 | 2,20 | 0,00 | 0,31 | 0,91 | 0,01 | 0,32 | 0,03 | 11,17 |
| P-P6 | 61,29 | 25,38 | 0,01 | 1,28 | 0,07 | 0,23 | 1,14 | 0,01 | 0,40 | 0,05 | 9,38 |

* Perda ao fogo (1000°C por 30 min)

O material fundente P-F1 é identificado por feldspato sódico, de aspecto rochoso e com presença natural de carbonatos (calcita (CaCO_3) e margnesita (MgCO_3)), os quais contribuem para o teores de CaO e MgO apresentados.

O material fundente P-F2 também é um feldspato sódico com aspecto físico rochoso, porém com baixo teor de carbonatos, conseqüentemente indicando menor teor de CaO e MgO .

O material P-F3 é um talco, possuindo elevado teor de MgO em relação aos outros óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos. O talco promove a formação de fases eutéticas durante tratamento térmico quando combinado com outros materiais ricos em óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos.

O material P-F4, definido por filito vem sendo utilizado na indústria cerâmica como componente de misturas para fabricação de revestimentos, louças sanitárias e outros produtos cerâmicos a partir da década de 1960^[30]. A partir de suas características físicas e químicas pode ser empregado como regulador das propriedades de queima. Sua utilização também tem razões econômicas facilitadas pela disponibilidade e baixo valor de mercado quando comparado às demais matérias-primas empregadas pelo setor cerâmico.

Os materiais plásticos P-P1, P-P2 e P-P3 são argilas predominantemente cauliníticas com presença variada de SiO₂ na forma de quartzo livre, classificadas como de alta, média e baixa fusibilidade, respectivamente.

O material plástico P-P4 é uma bentonita, contendo montmorilonita, com teores relativamente elevados de MgO, CaO e Na₂O.

Os materiais plásticos P-P5 e P-P6 são ricos em caulinita e identificados como caulins, os quais exercem geralmente função plástica e refratária estrutural em misturas cerâmicas. P-P5 é utilizado bruto conforme se apresenta naturalmente em jazida, já P-P6 passa por beneficiamento a úmido para separação de SiO₂ na forma de quartzo livre.

Tabela 21 Principais propriedades físicas das matérias-primas de porcelanato.

| Matéria-prima | Propriedades a cru | | Queima a 1200°C | | |
|---------------|--|---|--|---|--|
| | Dap seco (g/cm ³) ($\sigma = 0,004$) | RMF seco (kgf/cm ²) ($\sigma = 2,7$) | Dap (g/cm ³) ($\sigma = 0,004$) | Retração Linear (%) ($\sigma = 0,19$) | Absorção de água (%) ($\sigma = 0,17$) |
| P-F1 | 1,679 | * | 2,374 | 11,62 | 0,02 |
| P-F2 | 1,597 | * | 2,155 | 8,62 | 5,76 |
| P-F4 | 1,733 | * | 1,997 | 4,86 | 10,1 |
| P-P1 | 1,888 | 60,28 | 2,27 | 8,12 | 5,27 |
| P-P2 | 1,726 | 41,65 | 2,034 | 8,36 | 13,83 |
| P-P3 | 1,923 | 39,41 | 1,91 | 2,89 | 14,69 |
| P-P5 | 1,811 | * | 2,061 | 7,14 | 10,91 |
| P-P6 | 1,825 | * | 1,875 | 3,35 | 15,66 |

* Resistência mecânica excessivamente baixa.

Conforme apresentado na Tabela 21, os materiais P-F1 e P-F2 exibem elevada fusibilidade e baixíssima resistência mecânica a seco, devido à ausência de plasticidade e

necessidade obrigatória de aditivação a seco, geralmente com compostos orgânicos (como por exemplo amidos modificados) para retenção de forma.

O material P-F3 não é usualmente caracterizado puro devido à baixíssima resistência mecânica a seco pela mesma razão que os materiais P-F1 e P-F2, além de apresentar inércia frente ao tratamento térmico, pois é extremamente refratário e de difícil sinterização quando puro. Não foi possível realizar ensaios pós-queima com P-F3 devido à baixíssima resistência mecânica dos corpos-de-prova. Sua função está relacionada à formação de compostos eutéticos, quando misturado a outros materiais ricos em óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos.

Os materiais plásticos P-P1, P-P2 e P-P3 apresentam características a cru que favorecem seu uso nas etapas de processamento antes da queima. A resistência mecânica a seco é variável devido à presença natural de SiO_2 na forma de quartzo livre nestas matérias-primas. Sua contribuição pós-queima também é variável, sendo classificadas no contexto dos materiais aqui empregados como materiais de alta, média e baixa fusibilidade respectivamente.

A caracterização quanto às propriedades de queima dos materiais analisados separadamente não indica necessariamente que o comportamento da mistura será uma função direta do comportamento de cada um, pois a energia térmica fornecida aos materiais durante a queima pode ser suficiente para promover alteração das fases e conseqüentemente das propriedades. Pode-se utilizar a Figura 2 como exemplo, onde um feldspato potássico puro transforma-se do estado sólido para o estado líquido (fusão) a partir de $\sim 1600^\circ\text{C}$ e quando presente em mistura com sílica e alumina, a fusão ocorre a partir de 1140°C devido à formação de um eutético em função da composição química e da energia térmica. Desta forma, a caracterização isolada de um material classificado como fundente para misturas triaxiais, pode apresentar fusibilidade em temperatura mais elevada do que outros materiais, porém, quando em mistura contribui para formação de compostos mais baixo ponto de fusão.

O material P-F4, quando caracterizado isoladamente não revela baixo ponto de fusão, porém promove a formação de eutéticos quando em mistura com outros materiais ricos em sílica e óxidos de metais alcalinos e alcalino-terrosos.

Os materiais P-P5 e P-P6 apresentam baixa resistência mecânica a seco e baixa fusibilidade. Quando empregados em misturas triaxiais promovem reforço mecânico após a queima devido a transformação da caulinita em mulita.

4.2.2 Caracterização das misturas de porcelanato

Após processamento e determinação das propriedades escolhidas para este sistema, conforme definido no capítulo 3, apresentam-se os resultados nas Tabelas 22, 23, 24 e 25.

Primeiramente, a Tabela 22 apresenta a densidade aparente a seco, resistência mecânica a seco e flecha de deformação pirolástica para as misturas planejadas para o sistema de porcelanato.

Tabela 22 Resultado para as misturas processadas de porcelanato.

| Mistura | Dap Seco (g/cm ³) | RMF Seco (kgf/cm ²) | Flecha* (mm) |
|---------|----------------------------------|------------------------------------|-----------------|
| 1 | 1,824 | 11,09 | 2,36 |
| 1 | 1,825 | 9,28 | 2,78 |
| 2 | 1,975 | 71,25 | 2,17 |
| 2 | 1,978 | 68,39 | 2,21 |
| 3 | 1,938 | 41,27 | 2,86 |
| 3 | 1,937 | 52,14 | 3,20 |
| 4 | 1,850 | 15,40 | 4,19 |
| 4 | 1,845 | 16,52 | 4,25 |
| 5 | 1,959 | 55,79 | 3,98 |
| 5 | 1,975 | 53,04 | 3,60 |
| 6 | 1,950 | 49,08 | 7,30 |
| 7 | 1,964 | 60,66 | 2,48 |
| 8 | 1,918 | 38,16 | 7,06 |
| 9 | 1,868 | 17,11 | 5,64 |
| 10 | 1,850 | 14,24 | 5,69 |
| 11 | 1,928 | 46,45 | 7,39 |
| 12 | 1,958 | 54,56 | 5,12 |
| 13 | 1,763 | 6,79 | 2,93 |
| 14 | 1,924 | 22,14 | 6,04 |
| 15 | 1,934 | 39,76 | 7,20 |

* Tratamento térmico a 1190°C.

A repetibilidade dos resultados é dita aceitável, uma vez que se possa trabalhar com erro máximo de 0,8%, 22,8% e 16% para as propriedades Dap seco, RMF seco e flecha, respectivamente.

As Tabelas 23, 24 e 25 apresentam as principais propriedades de queima para as misturas processadas.

Tabela 23 Retração linear de queima em função da temperatura de queima de porcelanato.

| Mistura | Retração Linear de Queima (%) | | | | | | | |
|---------|-------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | 1100°C | 1120°C | 1140°C | 1160°C | 1170°C | 1180°C | 1190°C | 1200°C |
| 1 | 0,95 | 1,62 | 2,56 | 3,67 | 4,34 | 5,67 | 6,72 | 6,99 |
| 1 | 0,95 | 1,60 | 2,50 | 3,57 | 4,12 | 5,47 | 5,90 | 6,64 |
| 2 | 2,54 | 3,75 | 5,12 | 5,90 | 6,09 | 6,31 | 6,57 | 6,67 |
| 2 | 2,44 | 3,69 | 4,97 | 5,78 | 5,92 | 6,10 | 6,30 | 6,47 |
| 3 | 1,72 | 2,74 | 4,06 | 5,11 | 5,55 | 6,24 | 6,58 | 6,66 |
| 3 | 1,80 | 2,89 | 4,16 | 5,43 | 5,77 | 6,52 | 6,58 | 7,08 |
| 4 | 1,54 | 2,67 | 4,19 | 5,80 | 6,47 | 7,64 | 8,03 | 8,13 |
| 4 | 1,50 | 2,67 | 4,23 | 5,81 | 6,59 | 7,75 | 7,81 | 8,29 |
| 5 | 2,66 | 4,07 | 5,42 | 6,37 | 6,87 | 7,44 | 7,56 | 7,58 |
| 5 | 2,56 | 3,81 | 5,02 | 5,97 | 6,43 | 7,10 | 7,16 | 7,36 |
| 6 | 2,14 | 3,45 | 5,16 | 6,81 | 7,42 | 7,66 | 7,54 | 7,50 |
| 7 | 2,06 | 3,00 | 4,09 | 4,88 | 5,12 | 5,67 | 6,09 | 6,13 |
| 8 | 1,82 | 3,09 | 5,07 | 7,21 | 7,73 | 7,59 | 7,49 | 7,41 |
| 9 | 1,70 | 2,95 | 4,67 | 6,59 | 7,64 | 8,67 | 8,73 | 8,65 |
| 10 | 1,27 | 2,24 | 3,84 | 5,50 | 6,44 | 7,64 | 7,92 | 8,26 |
| 11 | 1,72 | 2,97 | 4,86 | 7,20 | 7,79 | 7,75 | 7,51 | 7,63 |
| 12 | 1,98 | 3,27 | 4,66 | 5,95 | 6,50 | 7,18 | 7,32 | 7,45 |
| 13 | 0,79 | 1,52 | 2,45 | 3,84 | 4,51 | 5,03 | 6,54 | 7,85 |
| 14 | 2,16 | 3,54 | 5,35 | 6,91 | 7,64 | 8,22 | 8,28 | 8,32 |
| 15 | 1,67 | 3,14 | 5,48 | 7,46 | 7,58 | 7,30 | 7,12 | 6,89 |

Tabela 24 Absorção de água em função da temperatura de queima de porcelanato

| Mistura | Absorção de Água (%) | | | | | | | |
|---------|----------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | 1100°C | 1120°C | 1140°C | 1160°C | 1170°C | 1180°C | 1190°C | 1200°C |
| 1 | 17,41 | 16,15 | 14,32 | 12,16 | 10,82 | 8,20 | 6,13 | 5,42 |
| 1 | 17,31 | 15,90 | 14,28 | 12,09 | 10,87 | 8,21 | 7,16 | 5,67 |
| 2 | 10,07 | 7,95 | 5,56 | 3,92 | 3,35 | 2,51 | 1,89 | 1,71 |
| 2 | 10,05 | 8,24 | 5,87 | 4,17 | 3,57 | 2,68 | 2,31 | 1,94 |
| 3 | 11,89 | 10,21 | 7,66 | 5,44 | 4,36 | 2,76 | 1,81 | 1,30 |
| 3 | 11,72 | 9,84 | 7,40 | 4,95 | 3,92 | 2,18 | 1,75 | 0,93 |
| 4 | 15,31 | 13,06 | 10,02 | 6,91 | 5,36 | 3,01 | 1,76 | 1,49 |
| 4 | 15,35 | 13,05 | 10,04 | 6,72 | 5,13 | 2,75 | 2,49 | 1,23 |
| 5 | 10,29 | 7,84 | 5,21 | 2,89 | 1,80 | 0,41 | 0,22 | 0,15 |
| 5 | 10,25 | 7,98 | 5,58 | 3,39 | 2,08 | 0,60 | 0,48 | 0,26 |
| 6 | 11,12 | 8,73 | 5,56 | 2,07 | 0,37 | 0,08 | 0,06 | 0,03 |
| 7 | 11,46 | 9,84 | 7,84 | 6,34 | 5,36 | 3,99 | 2,65 | 2,41 |
| 8 | 11,64 | 9,19 | 5,52 | 0,72 | 0,23 | 0,04 | 0,01 | 0,01 |
| 9 | 14,41 | 12,13 | 8,80 | 4,99 | 2,51 | 0,33 | 0,15 | 0,09 |
| 10 | 14,90 | 12,88 | 9,87 | 6,55 | 4,72 | 2,04 | 1,31 | 0,59 |
| 11 | 12,03 | 9,72 | 6,25 | 1,03 | 0,26 | 0,14 | 0,01 | 0,01 |
| 12 | 11,27 | 8,93 | 6,17 | 3,19 | 1,95 | 0,43 | 0,31 | 0,17 |
| 13 | 18,67 | 17,55 | 15,58 | 13,02 | 11,21 | 8,06 | 7,02 | 4,85 |
| 14 | 12,30 | 9,83 | 6,43 | 2,96 | 0,90 | 0,16 | 0,09 | 0,08 |
| 15 | 11,48 | 8,92 | 4,60 | 0,35 | 0,07 | 0,02 | 0,01 | 0,01 |

Tabela 25 Densidade aparente pós-queima em função da temperatura de queima.

| Mistura | Densidade Aparente Pós-queima (g/cm ³) | | | | | | | |
|---------|--|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | 1100°C | 1120°C | 1140°C | 1160°C | 1170°C | 1180°C | 1190°C | 1200°C |
| 1 | 1,777 | 1,815 | 1,869 | 1,937 | 1,982 | 2,071 | 2,149 | 2,175 |
| 1 | 1,784 | 1,818 | 1,871 | 1,937 | 1,979 | 2,073 | 2,112 | 2,167 |
| 2 | 2,022 | 2,099 | 2,194 | 2,248 | 2,264 | 2,286 | 2,312 | 2,317 |
| 2 | 2,023 | 2,087 | 2,177 | 2,234 | 2,255 | 2,281 | 2,297 | 2,306 |
| 3 | 1,953 | 1,997 | 2,103 | 2,183 | 2,218 | 2,740 | 2,311 | 2,316 |
| 3 | 1,959 | 2,025 | 2,114 | 2,199 | 2,237 | 2,299 | 2,316 | 2,335 |
| 4 | 1,850 | 1,915 | 2,018 | 2,131 | 2,190 | 2,285 | 2,334 | 2,343 |
| 4 | 1,844 | 1,913 | 2,018 | 2,134 | 2,197 | 2,288 | 2,302 | 2,342 |
| 5 | 2,014 | 2,087 | 2,182 | 2,277 | 2,314 | 2,363 | 2,384 | 2,385 |
| 5 | 2,004 | 2,099 | 2,186 | 2,259 | 2,297 | 2,349 | 2,363 | 2,377 |
| 6 | 1,984 | 2,069 | 2,184 | 2,321 | 2,370 | 2,391 | 2,389 | 2,384 |
| 7 | 1,955 | 2,026 | 2,097 | 2,148 | 2,174 | 2,218 | 2,254 | 2,257 |
| 8 | 1,959 | 2,041 | 2,181 | 2,348 | 2,387 | 2,378 | 2,371 | 2,362 |
| 9 | 1,869 | 1,944 | 2,062 | 2,205 | 2,292 | 2,376 | 2,400 | 2,400 |
| 10 | 1,850 | 1,912 | 2,014 | 2,135 | 2,208 | 2,308 | 2,339 | 2,358 |
| 11 | 1,950 | 2,025 | 2,151 | 2,326 | 2,376 | 2,380 | 2,375 | 2,355 |
| 12 | 1,980 | 2,061 | 2,162 | 2,260 | 2,308 | 2,367 | 2,387 | 2,395 |
| 13 | 1,731 | 1,764 | 1,825 | 1,906 | 1,963 | 2,072 | 2,114 | 2,195 |
| 14 | 1,931 | 2,030 | 2,156 | 2,281 | 2,342 | 2,396 | 2,409 | 2,414 |
| 15 | 1,964 | 2,046 | 2,210 | 2,363 | 2,367 | 2,339 | 2,335 | 2,307 |

A análise da mudança das propriedades de queima pode ser realizada a partir da obtenção de um diagrama de gresificação ^[31] para cada mistura em estudo, o qual é composto pelas informações das Tabelas 23, 24 e 25, porém em forma gráfica como exemplificado para a mistura 1, do sistema porcelanato, na Figura 34.

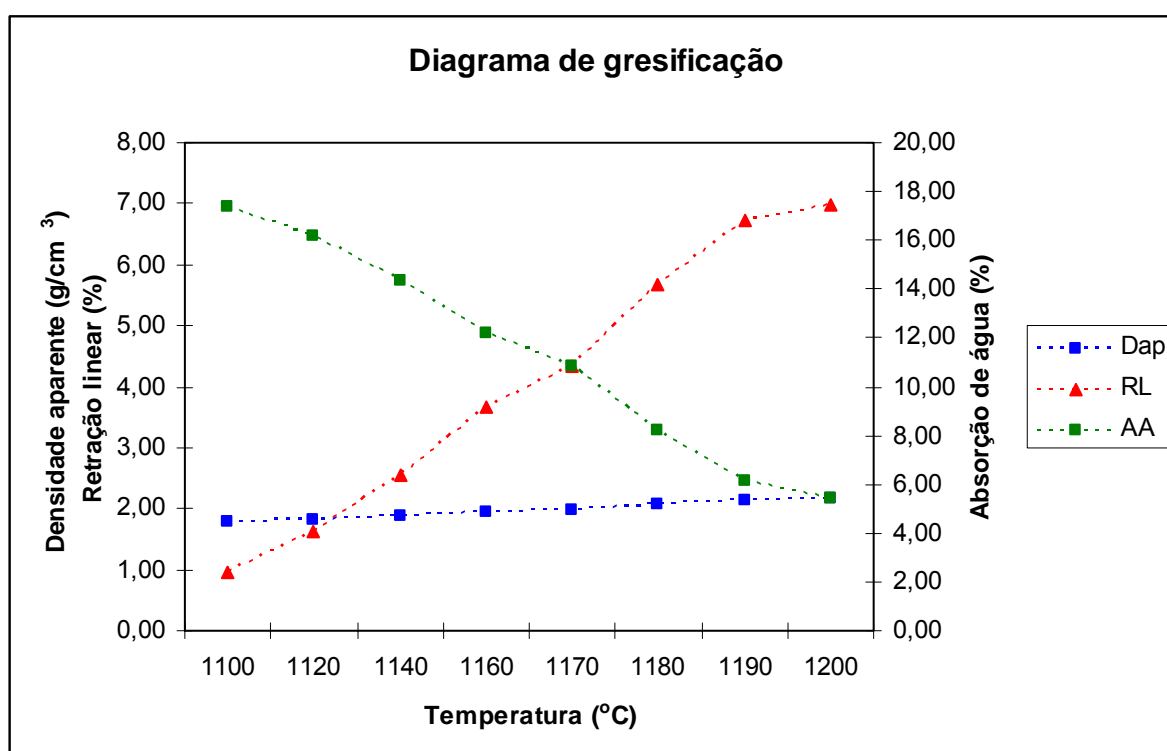


Figura 34 Diagrama de gresificação. Mistura 1 do sistema porcelanato.

A partir do diagrama de gresificação define-se a temperatura na qual a mistura atinge a máxima densidade aliada à menor absorção de água. A estabilidade das propriedades frente à temperatura de queima também é avaliada mais facilmente nesta forma gráfica, sendo possível a quantificação da variação dimensional do corpo para cada temperatura a partir da retração linear.

Ao comparar os diagramas de gresificação para todas as misturas, extraindo a temperatura na qual a absorção aproxima-se de zero, a densidade é máxima e o intervalo de estabilidade dimensional, e relacionar estas informações com as composições da Tabela 4, é possível identificar qualitativamente a influência de cada componente sobre o comportamento da mistura.

Esta mesma análise, porém realizada de forma quantitativa pode ser obtida a partir do resultado da análise por regressão polinomial, onde se avalia separadamente o efeito de cada termo do polinômio (componente) sobre as propriedades de misturas em estudo.

4.2.3 Treinamento das redes neurais artificiais

Os conjuntos de dados compostos pelas formulações e por cada propriedade apresentada constituíram os valores de treinamento para as redes, executado conforme apresentado no sub-capítulo 3.5. Uma rede foi constituída para cada propriedade, sendo definida em função do número de neurônios, número de iterações de treinamento e valor de λ em função do erro de previsão (e_p) obtido pela Equação 13.

Os valores para estes três parâmetros para cada rede foram definidos através de análise gráfica a partir da variação do número de neurônios em 8 níveis, número de iterações em 5 níveis e valor λ em 5 níveis, em função primeiramente do erro médio quadrático (Equação 2) e posteriormente pelo erro de previsão e_p . O menor valor de EMQ e de e_p definiram os parâmetros ótimos das redes.

Aumentar o número de neurônios de uma rede neural artificial usada como aproximador de uma função, corresponde a aumentar a capacidade da mesma de ajustar-se a relações mais complexas, pois assim aumenta-se o número de termos ajustáveis durante o treinamento.

O gráfico de EMQ em função do número de neurônios, apresentado na Figura 31 apresentou-se da mesma forma para todos os treinamentos e todas as propriedades estudadas. Este comportamento deve-se ao fato de que o número de entradas e saídas apresentadas a todas as redes é o mesmo (15 formulações e respectivas propriedades). Cinco replicações para cada ponto do gráfico determinaram o desvio padrão associado.

O número de iterações e o valor λ não modificam o gráfico da Figura 35. Logo, determina-se que as redes aprendem a relação entre formulação e propriedade caso sejam compostas de no mínimo 14 neurônios.

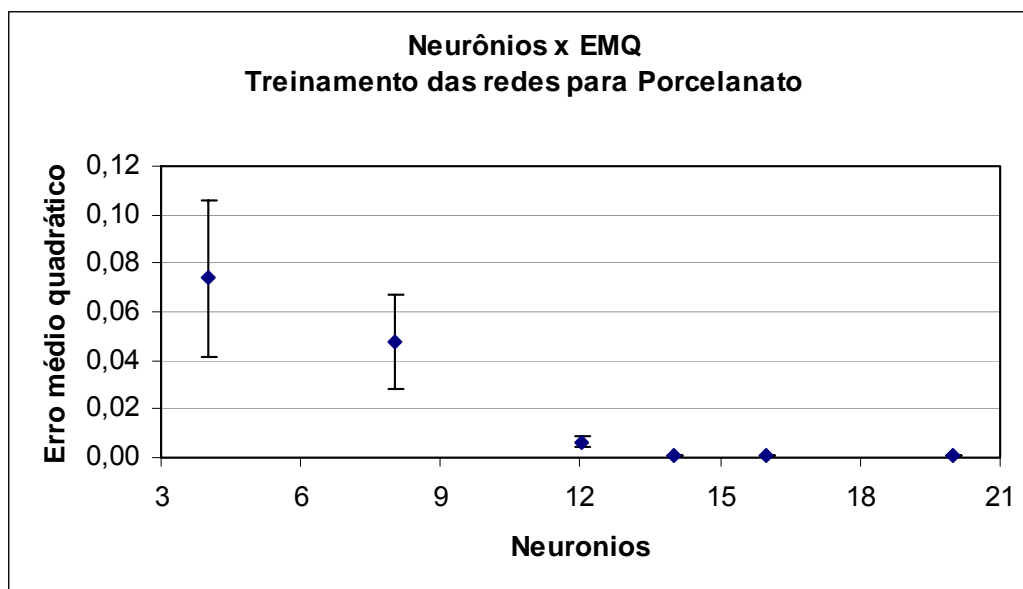


Figura 35 Comportamento do EMQ em função do número de neurônios. Cinco iterações.

O erro de previsão, para formulações não contidas no conjunto de treinamento, em função do número de neurônios tem um comportamento característico para cada propriedade em estudo, uma vez que a complexidade da relação existente entre formulações cerâmicas e respectivas propriedades depende principalmente das transformações de fases e propriedades associadas a estas transformações. Logo, as relações em estudo são melhor ajustadas por um número de neurônios que corresponda a complexidade de cada uma.

Em geral, não é possível afirmar que há uma relação direta entre o número de iterações, o parâmetro λ e o erro de previsão, pois, para nenhuma propriedade foi observada variação do erro de previsão em função dos cinco níveis testados para cada parâmetro.

As Figuras de 36 a 47 apresentam os gráficos contendo a relação entre o número de neurônios e o erro de previsão para cada propriedade em estudo, sendo relativas a três formulações não contidas no conjunto de treinamento e apresentadas na Tabela 26.

Tabela 26 Formulações de verificação para o sistema porcelanato.

| Matérias-primas | Fórmulas de verificação (% em peso) | | |
|-----------------|-------------------------------------|----|----|
| | F | G | H |
| F1 | 10 | 15 | 15 |
| F2 | 50 | 45 | 35 |
| F3 | 10 | | |
| P1 | | | 3 |
| P2 | 5 | 10 | 5 |
| P3 | | 5 | 10 |
| P4 | | | 7 |
| P5 | 20 | | 20 |
| P6 | | 20 | |
| P7 | 5 | 5 | 5 |

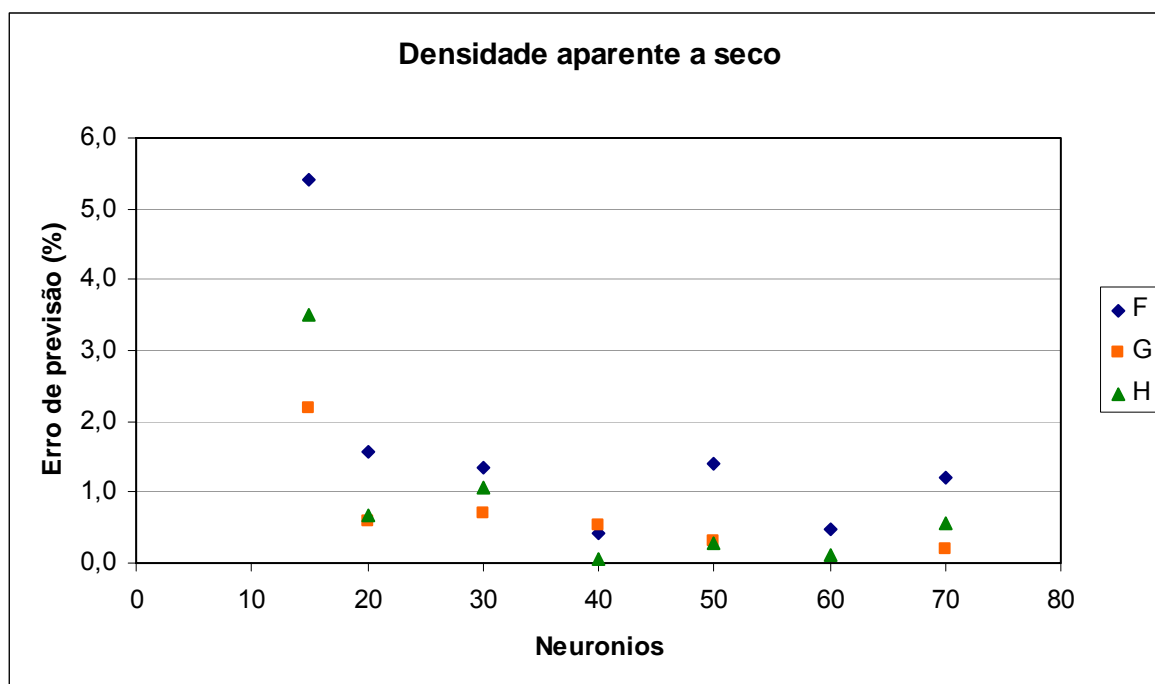


Figura 36 Neurônios e e_p para densidade aparente a seco. $\bar{e}_p = 0,2\%$ com 60 neurônios.

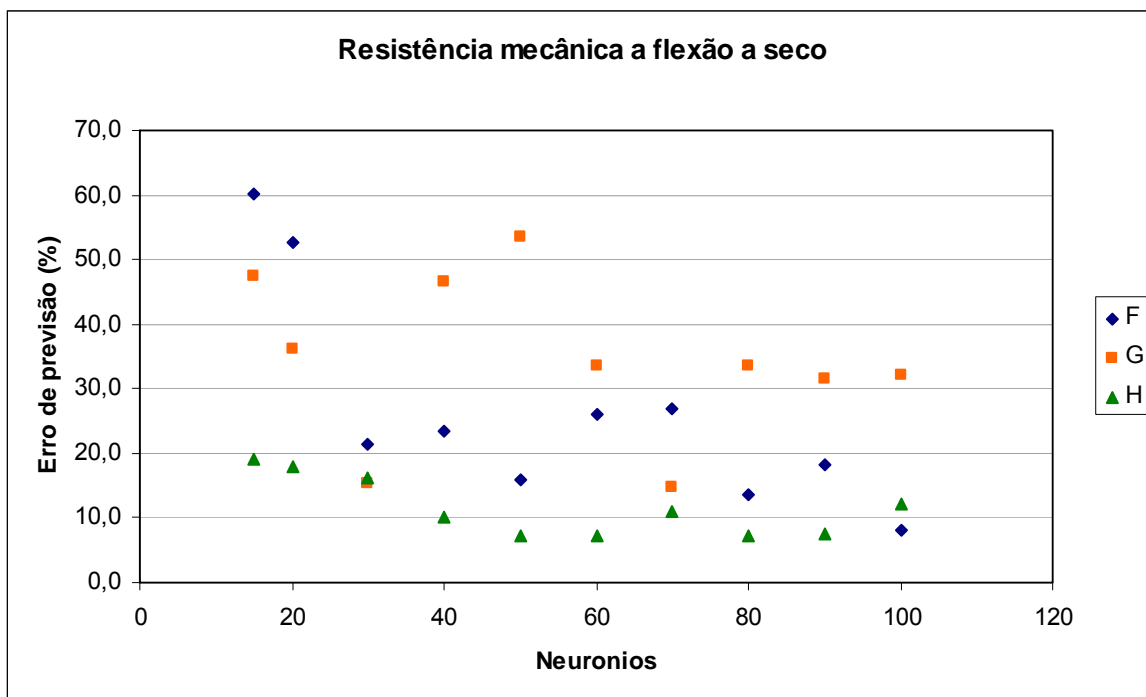


Figura 37 Neurônios e e_p para resistência mecânica a flexão a seco. $\bar{e}_p = 17,6\%$ com 70 neurônios.

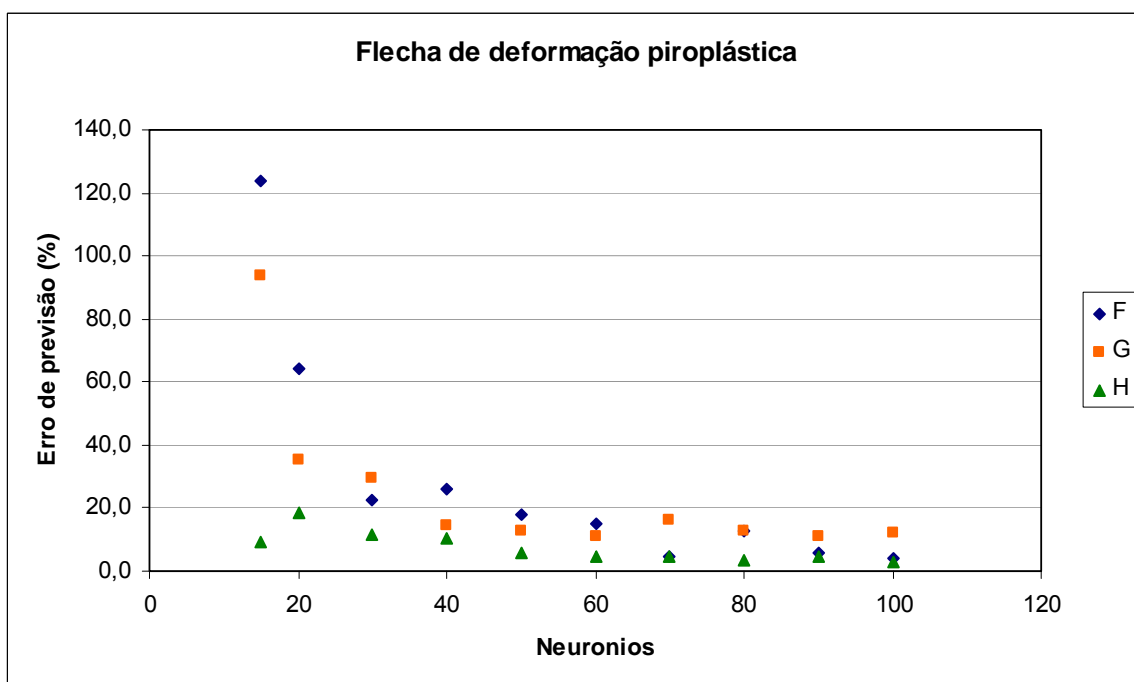


Figura 38 Neurônios e e_p para flecha de deformação pirolástica. $\bar{e}_p = 7,1\%$ com 90 neurônios.

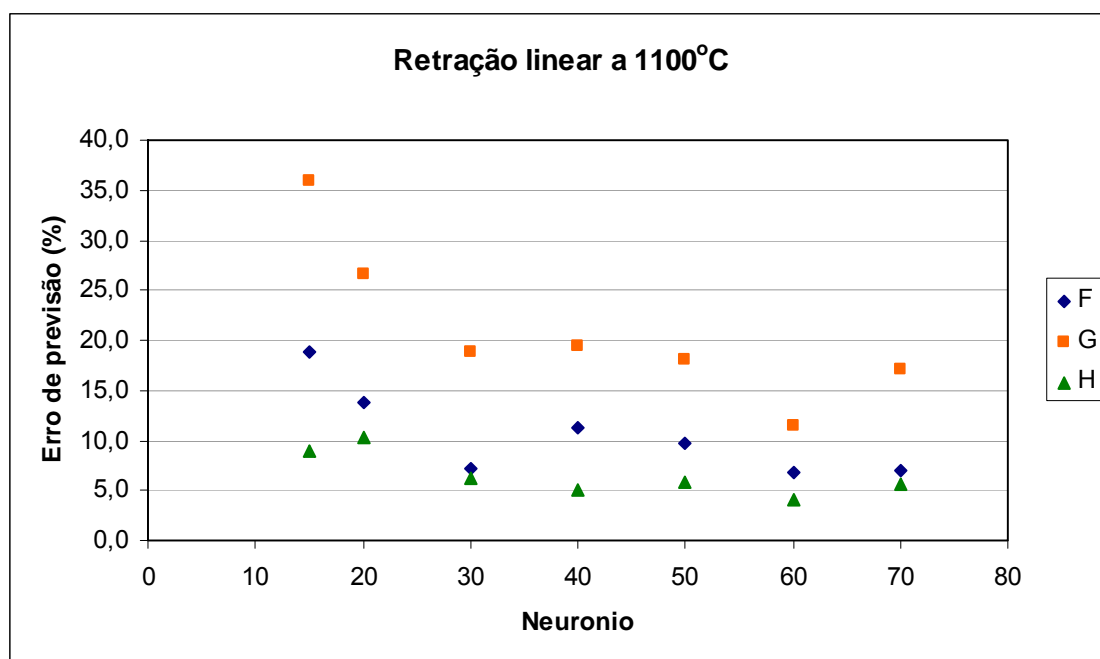


Figura 39 Neurônios e e_p para para retração linear a 1100°C. $\bar{e}_p = 7,5\%$ com 60 neurônios.

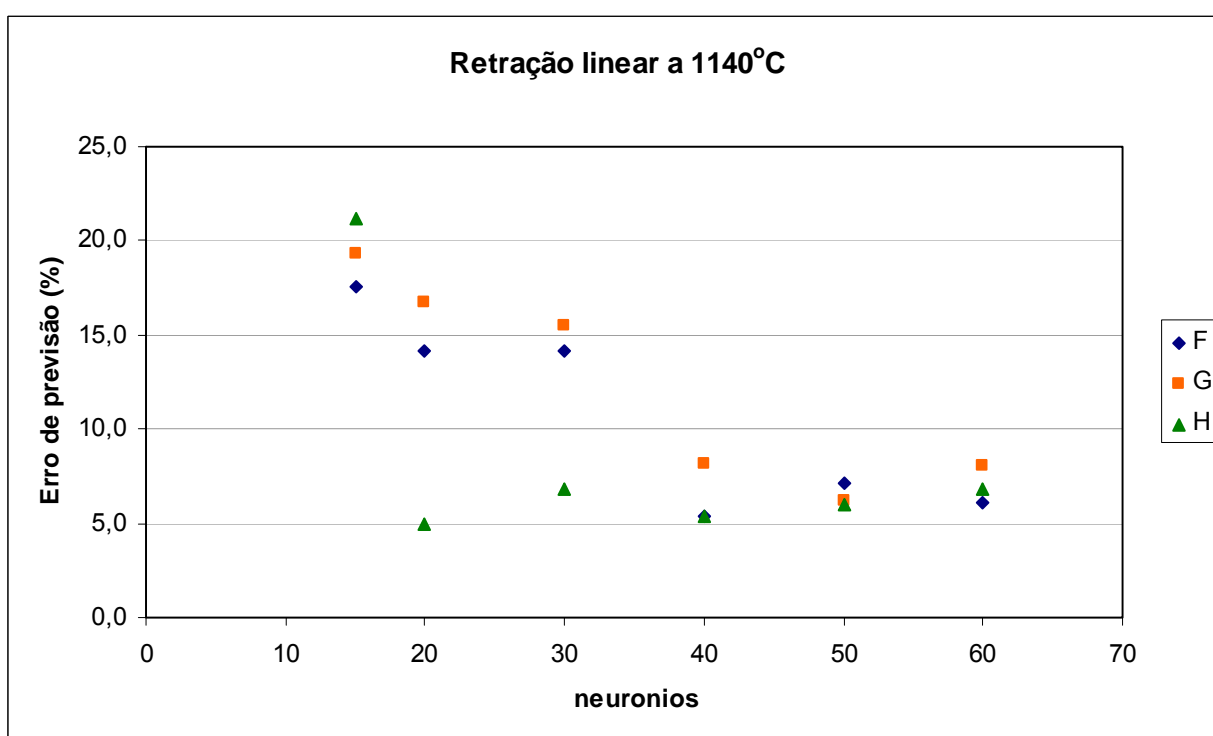


Figura 40 Neurônios e e_p para retração linear a 1140°C. $\bar{e}_p = 6,4\%$ com 50 neurônios.

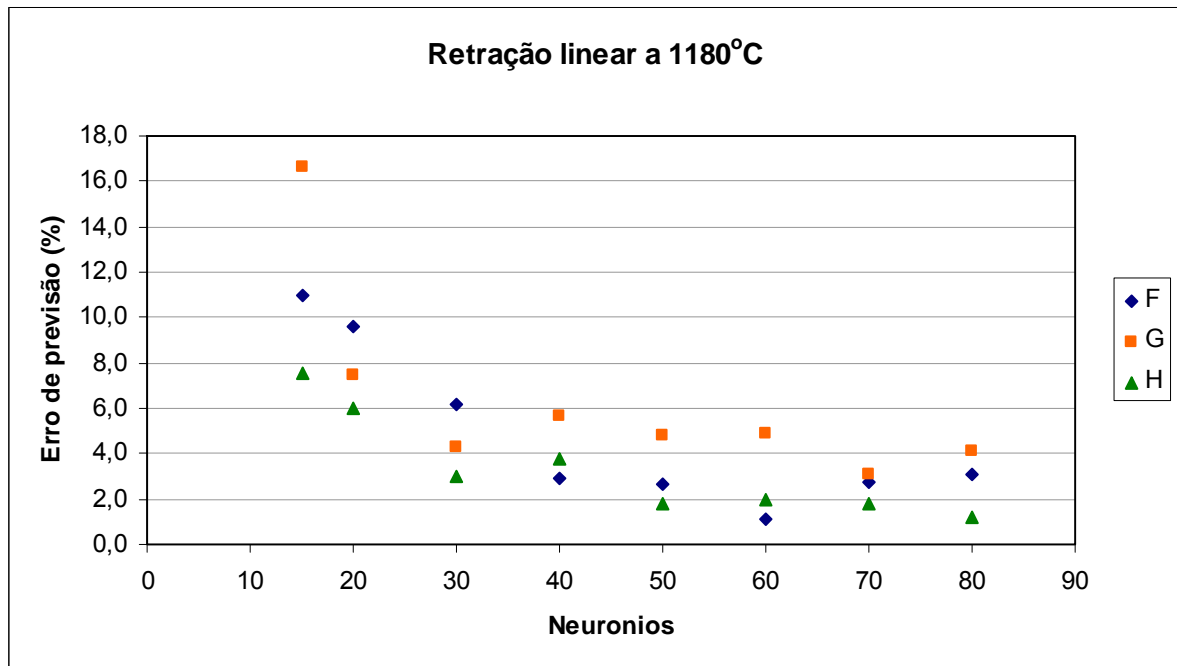


Figura 41 Neurônios e e_p para retração linear a 1180°C. $\bar{e}_p = 2,5\%$ com 70 neurônios.

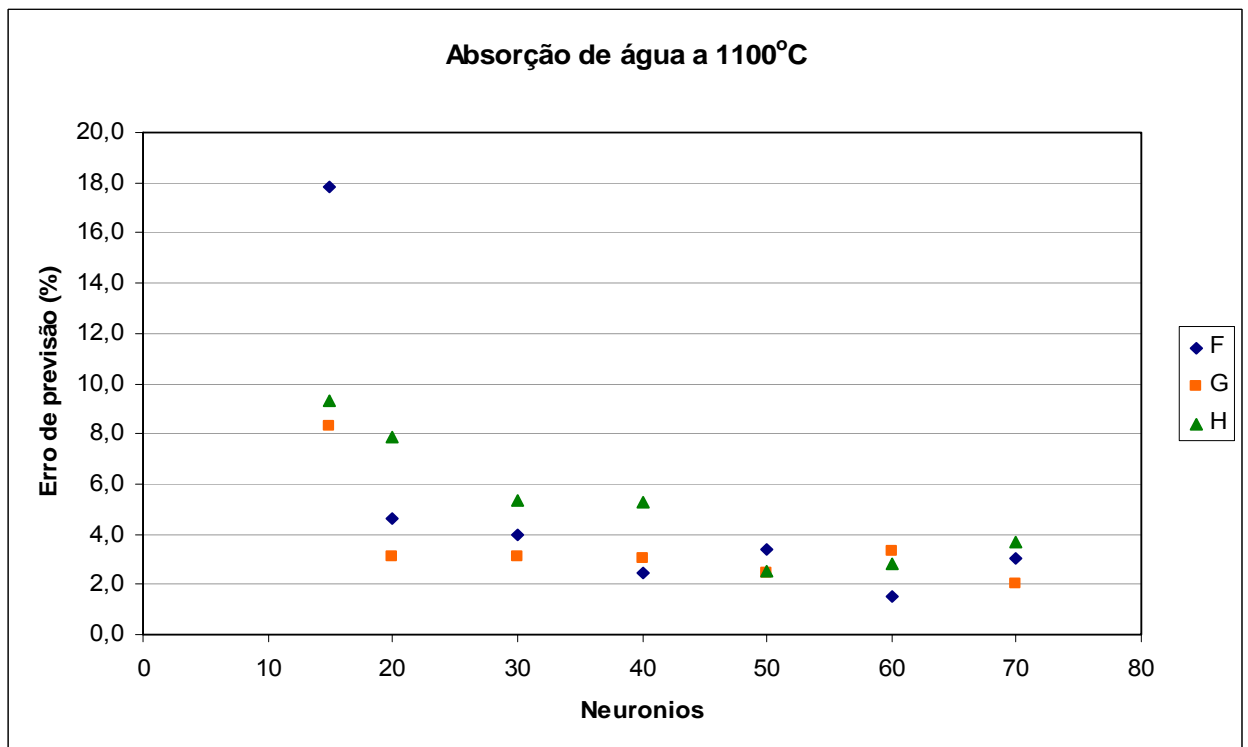


Figura 42 Neurônios e e_p para absorção de água a 1100°C. $\bar{e}_p = 2,5\%$ com 60 neurônios.

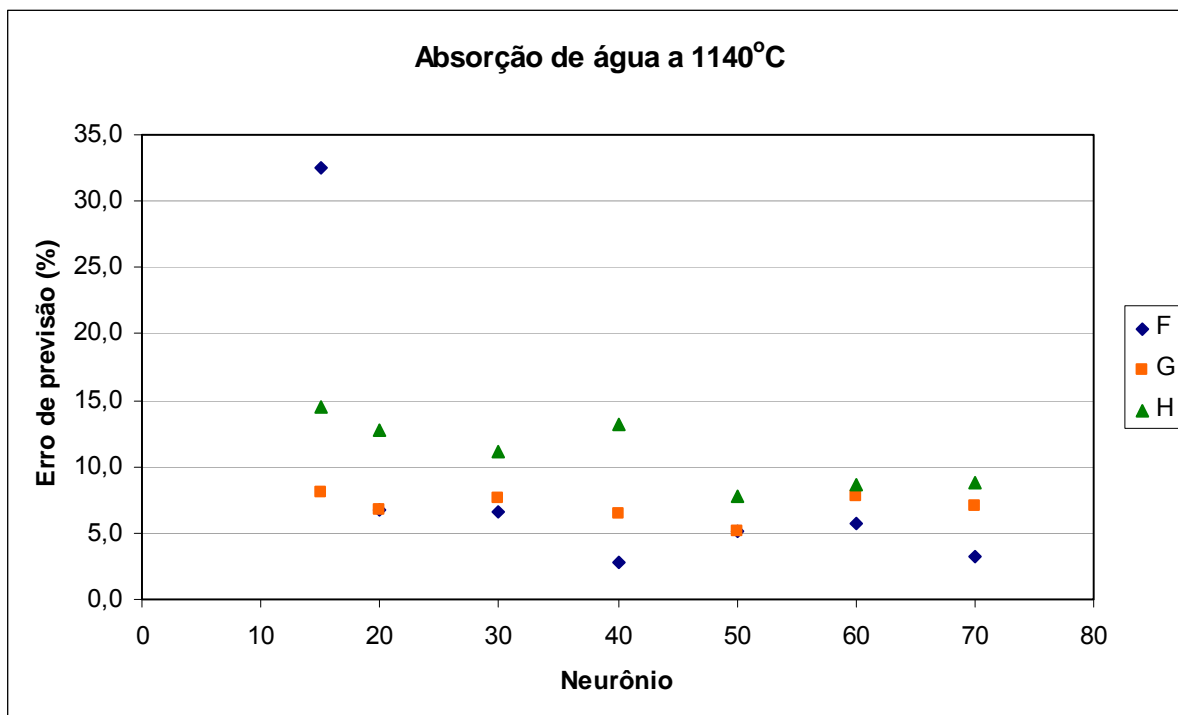


Figura 43 Neurônios e e_p para absorção de água a 1140°C. $\bar{e}_p = 6,0\%$ com 50 neurônios.

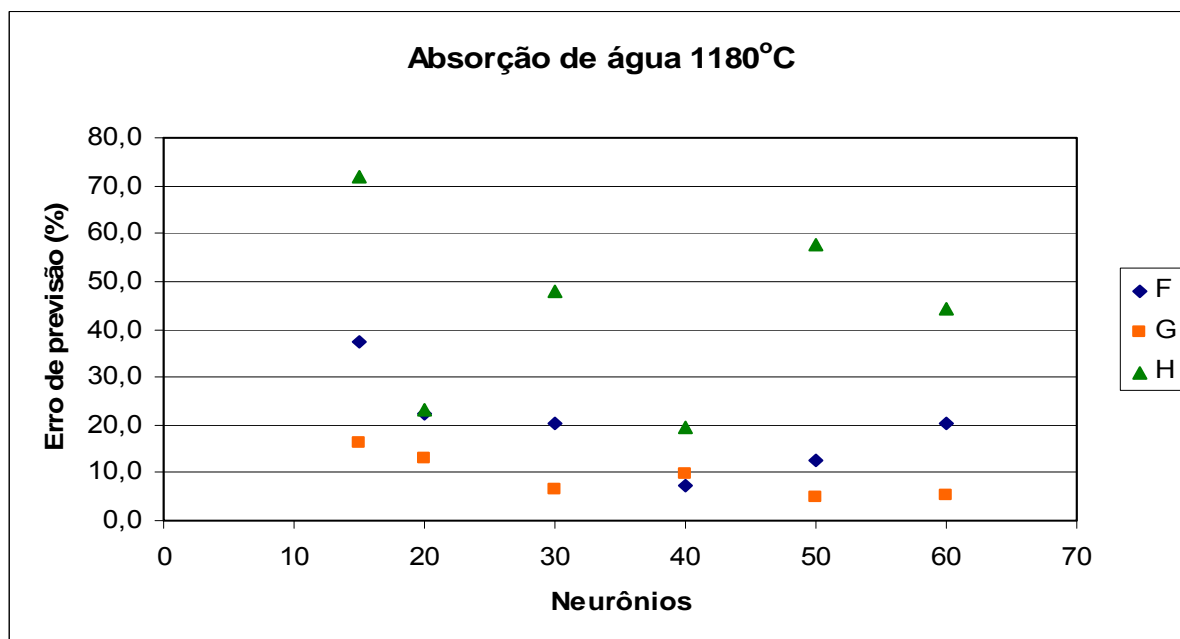


Figura 44 Neurônios e e_p para absorção de água a 1180°C. $\bar{e}_p = 12,2\%$ com 40 neurônios.

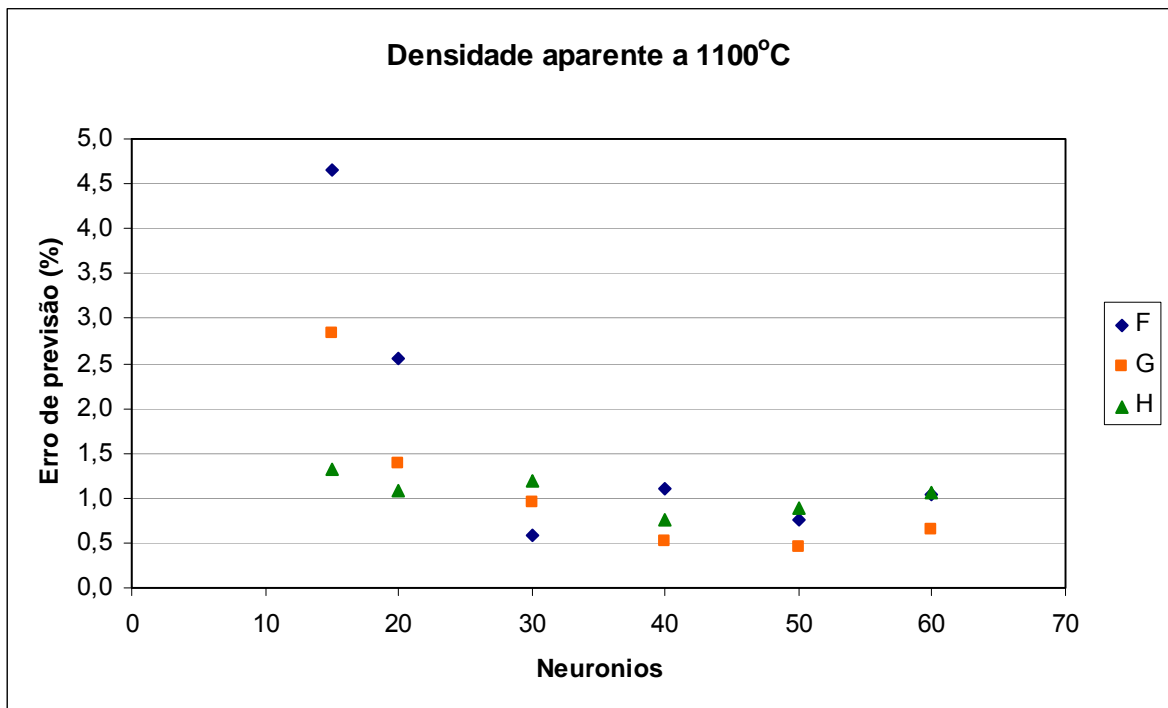


Figura 45 Neurônios e e_p para densidade aparente a 1100°C. $\bar{e}_p = 0,7\%$ com 50 neurônios.

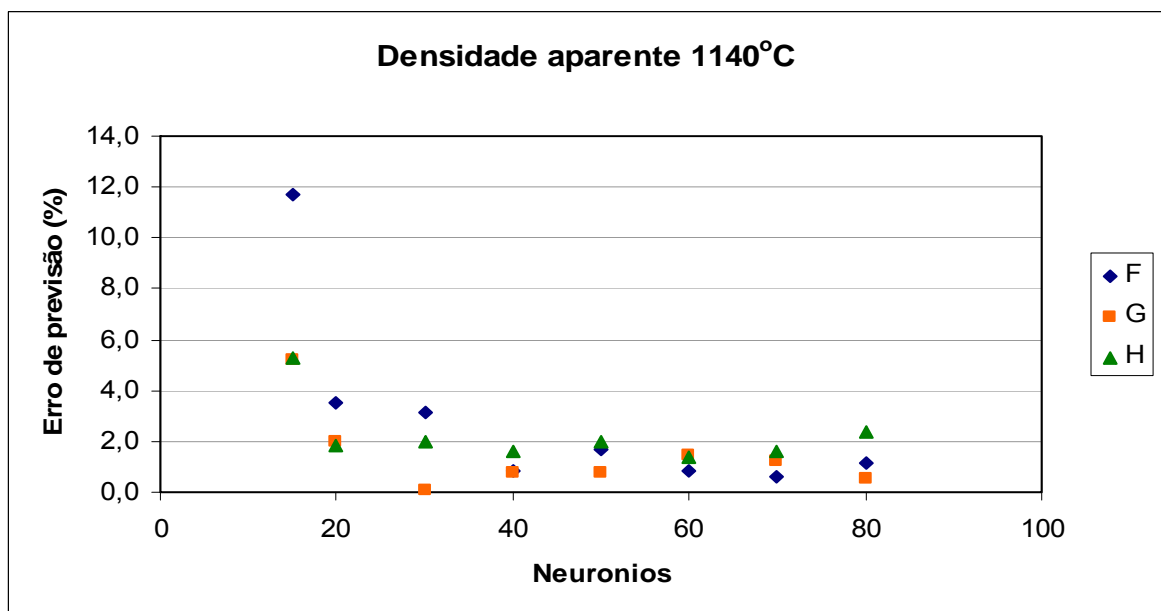


Figura 46 Neurônios e e_p para densidade aparente a 1140°C. $\bar{e}_p = 1,1\%$ com 70 neurônios.

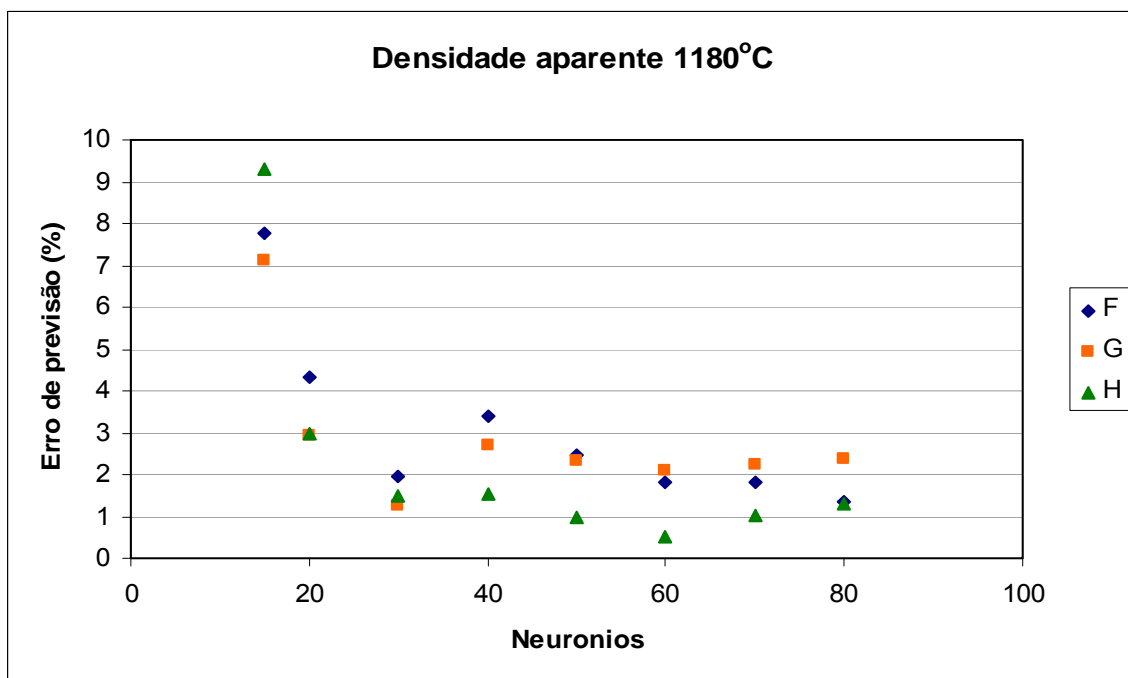


Figura 47 Neurônios e e_p para densidade aparente a 1180°C. $\bar{e}_p = 1,7\%$ com 70 neurônios.

Para todos os gráficos das Figuras 36 a 47 nota-se que os erros relativos das respostas em função do número de neurônios das redes para as três composições seguem as mesmas tendências, indicando que ocorre generalização da relação entre formulação e propriedades. Se esta relação não fosse compreendida pelas redes, o erro relativo às composições seguiria tendências diferentes.

Erros médios de previsão entre 0 e 10% foram encontrados para as propriedades de densidade aparente a seco, retração linear pós-queima, densidade aparente pós-queima e absorção de água (1100 e 1140°C) sendo o menor erro de valor médio igual a 0,2% para a propriedade de densidade aparente a seco. Para estas propriedade houve bom aprendizado e generalização.

Erros de previsão entre 10 e 20% foram encontrados para as propriedades de resistência mecânica a flexão a seco e absorção de água a 1180°C. O maior erro de previsão foi para a propriedade resistência mecânica a flexão a seco. Para estas propriedades houve bom aprendizado, porém a generalização não ocorreu de forma a garantir previsões com baixo nível de erro.

O desvio padrão associado a cada ponto de cada gráfico foi obtido através de cinco replicações e está analisado comparativamente com o modelo resultante da regressão linear no sub-capítulo 4.2.5.

4.2.4 Ajuste Linear

Os mesmos dados utilizados para treinamento das redes foram interpretados pelo método de análise por regressão linear, onde se constituem modelos lineares para cada propriedade em análise. O coeficiente de determinação múltipla (R^2) e o coeficiente de significância (P) de cada modelo são apresentados nas Tabelas 27 e 28.

Tabela 27 Coeficientes de determinação e significância dos modelos lineares para propriedades de porcelana elétrica.

| Propriedade | R^2 | P |
|-----------------------------|-------|-------|
| Densidade Aparente a seco | 0,952 | 0,000 |
| Resistência Mecânica a seco | 0,949 | 0,000 |
| Flecha | 0,971 | 0,000 |

Tabela 28 Coeficientes de determinação e significância dos modelos lineares para propriedades de porcelana elétrica.

| Temperatura (°C) | Absorção de água | | Retração Linear | | Densidade aparente pós-queima | |
|------------------|------------------|-------|-----------------|-------|-------------------------------|-------|
| | R^2 | P | R^2 | P | R^2 | P |
| 1100 | 0,985 | 0,000 | 0,974 | 0,000 | 0,988 | 0,000 |
| 1140 | 0,985 | 0,000 | 0,979 | 0,000 | 0,993 | 0,000 |
| 1180 | 0,955 | 0,000 | 0,946 | 0,000 | 0,993 | 0,000 |

Através de P (<5%) e R^2 (~1) é possível definir que há baixo erro em afirmar que as relações entre o teor de cada componente e as propriedades de densidade aparente a seco e flecha são lineares.

4.2.5 Verificação da capacidade preditiva dos modelos

Através de comparação por análise gráfica, contendo os valores obtidos experimentalmente para cada propriedade em estudo e os valores previstos pelos modelos lineares e pelas redes neurais, é possível verificar a capacidade preditiva dos modelos.

As Figuras de 48 a 59 apresentam os gráficos para verificação da capacidade preditiva dos modelos, sendo que o desvio padrão associado a cada ponto previsto pelas redes neurais foi obtido através de cinco replicações.

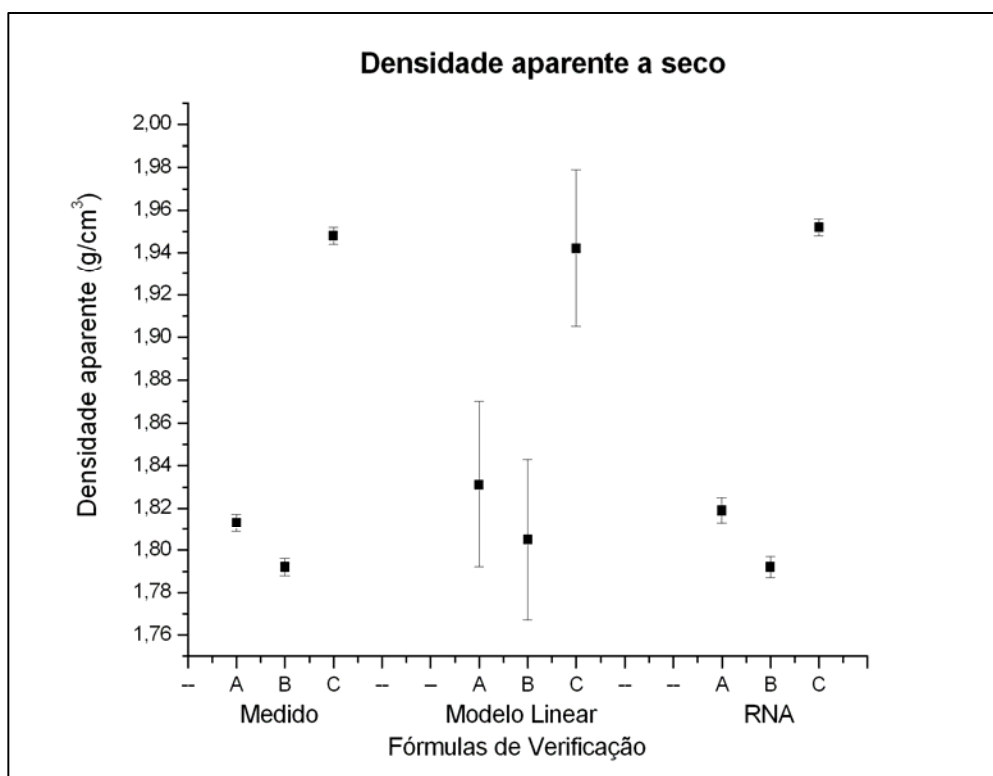


Figura 48 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a seco.

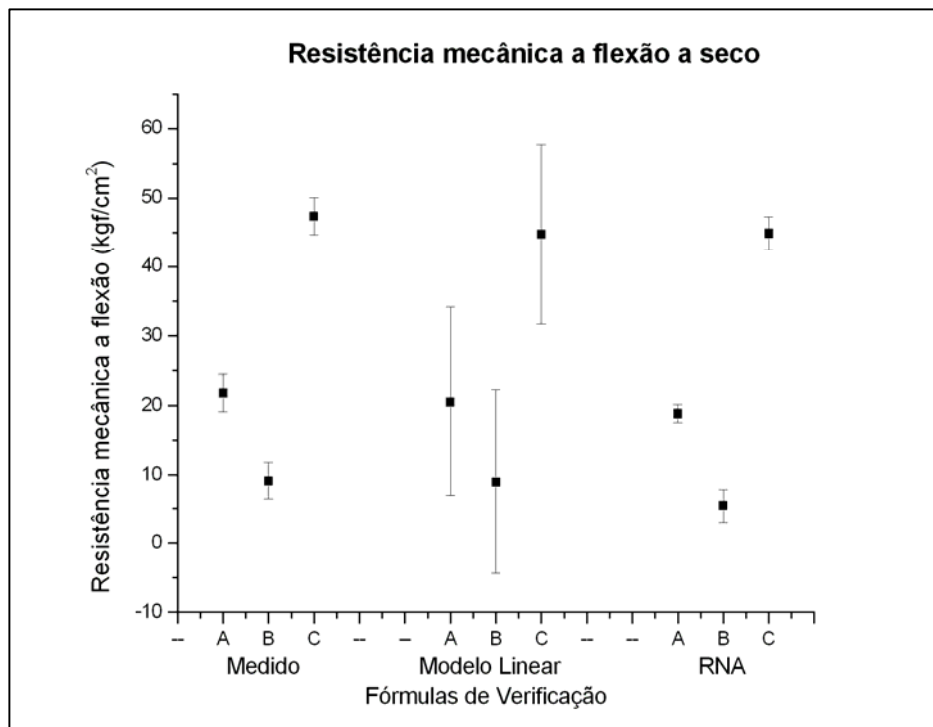


Figura 49 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente a seco.

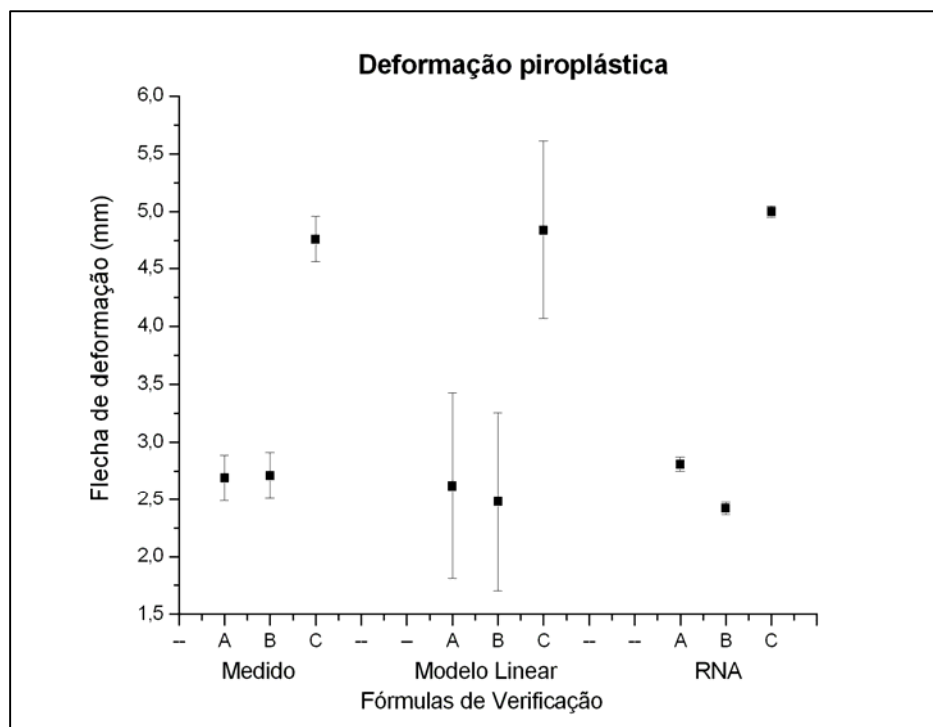


Figura 50 Verificação da capacidade preditiva de flecha de deformação pirolástica.

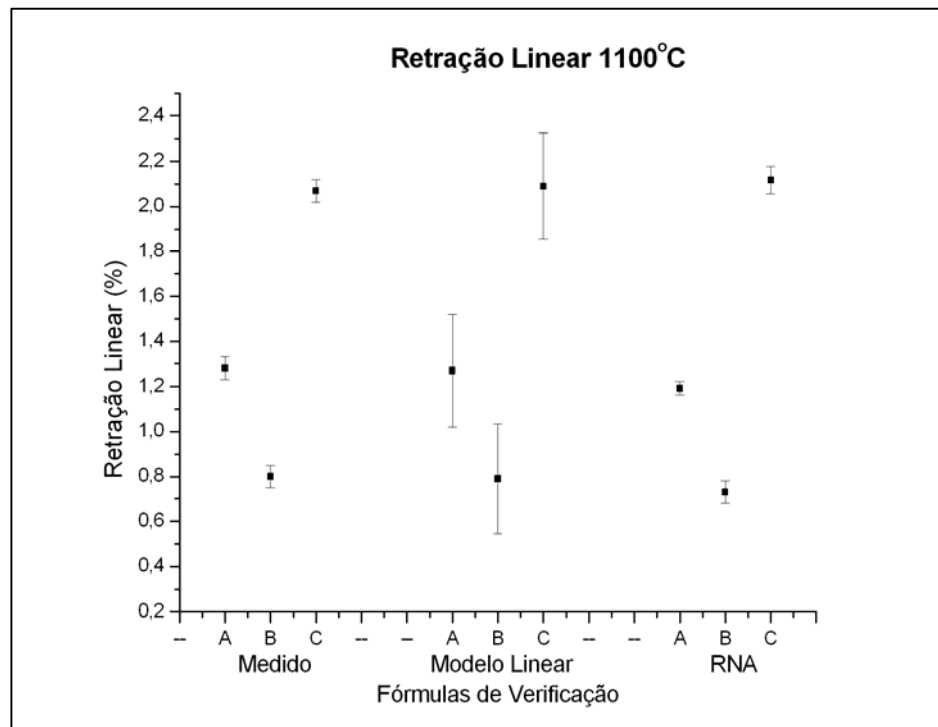


Figura 51 Verificação da capacidade preditiva de retração linear de queima a 1100°C.

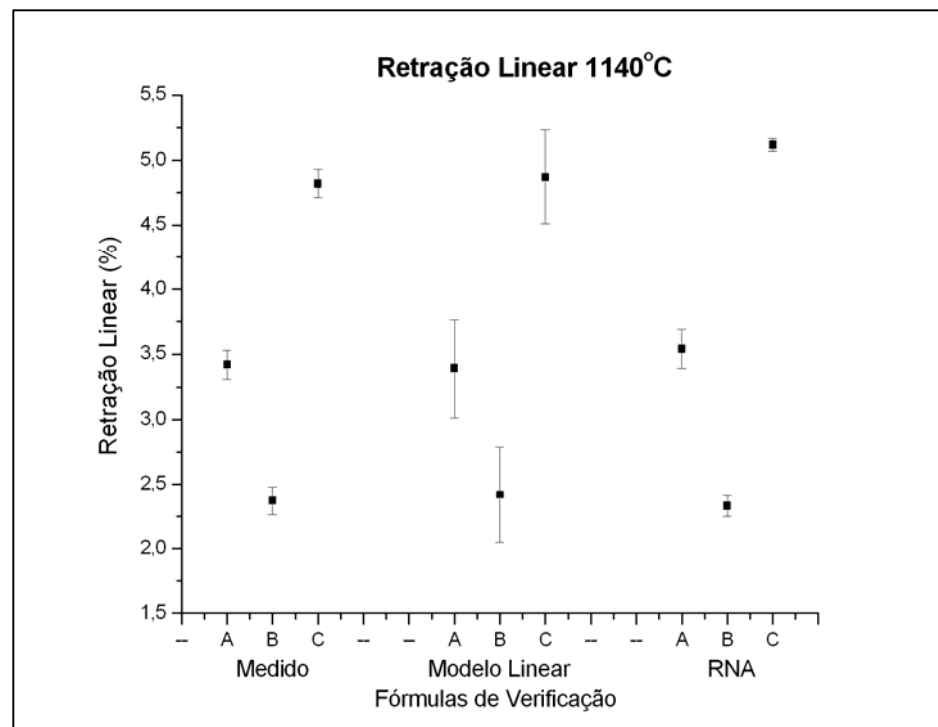


Figura 52 Verificação da capacidade preditiva de retração linear de queima a 1140°C.

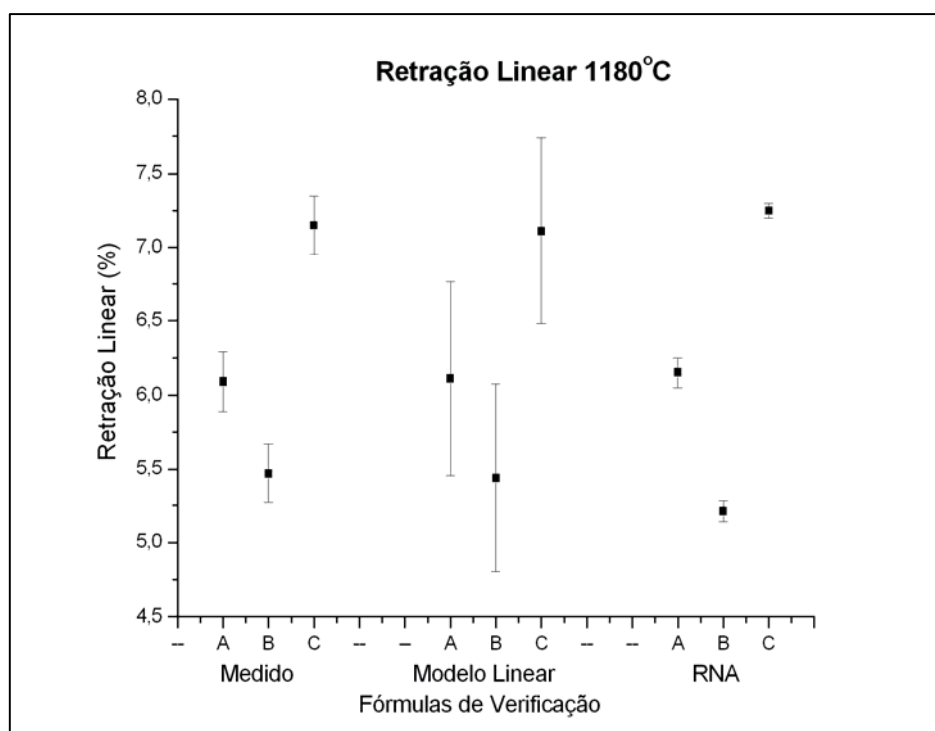


Figura 53 Verificação da capacidade preditiva de retração linear de queima a 1180°C.

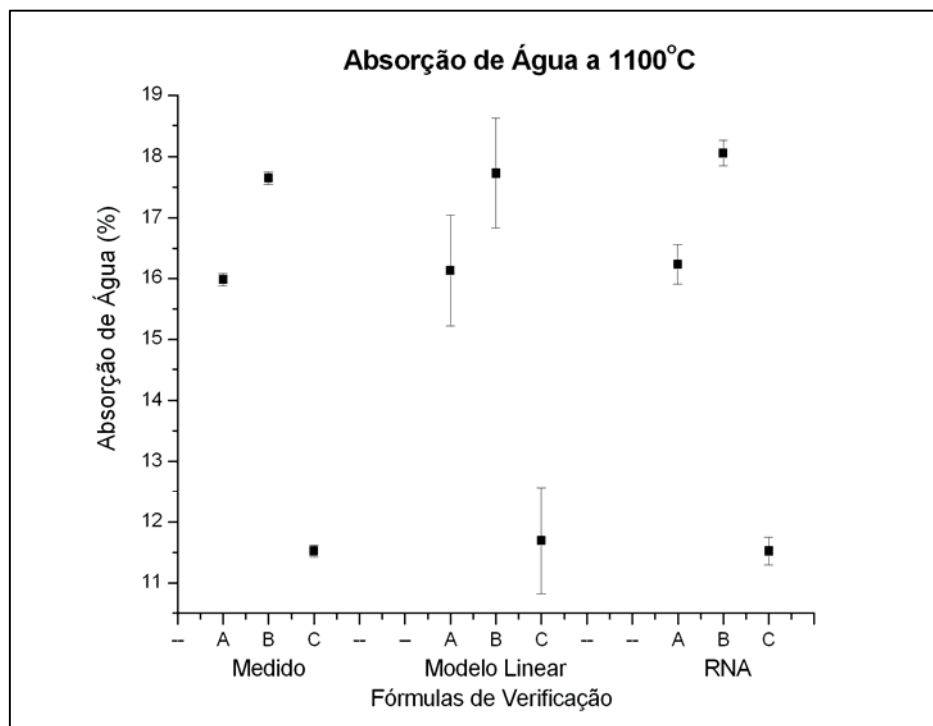


Figura 54 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água pós-queima a 1100°C.

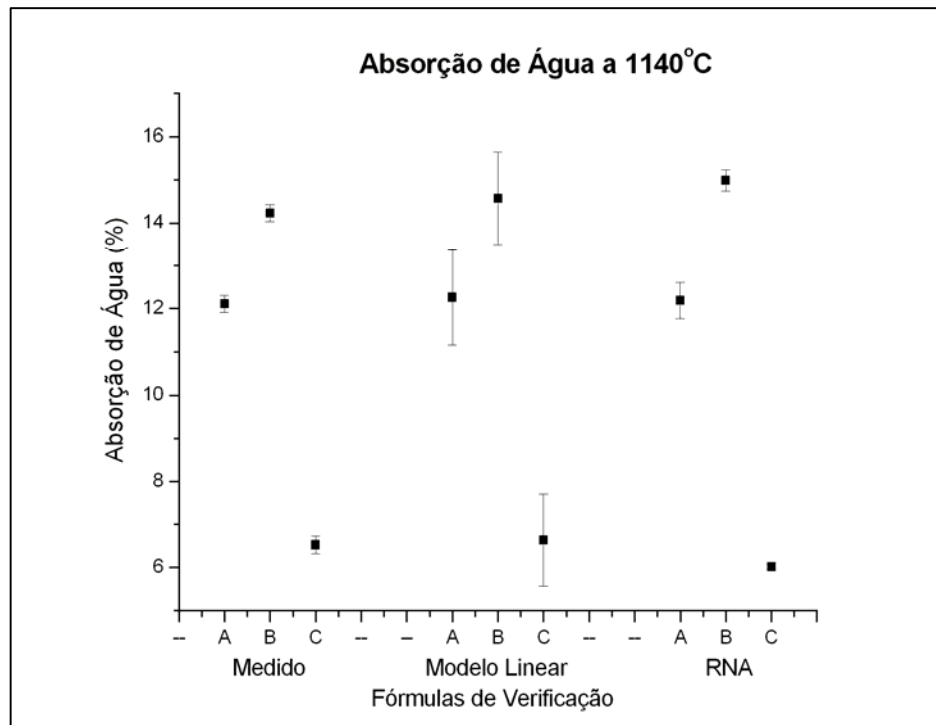


Figura 55 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água pós-queima a 1140°C.

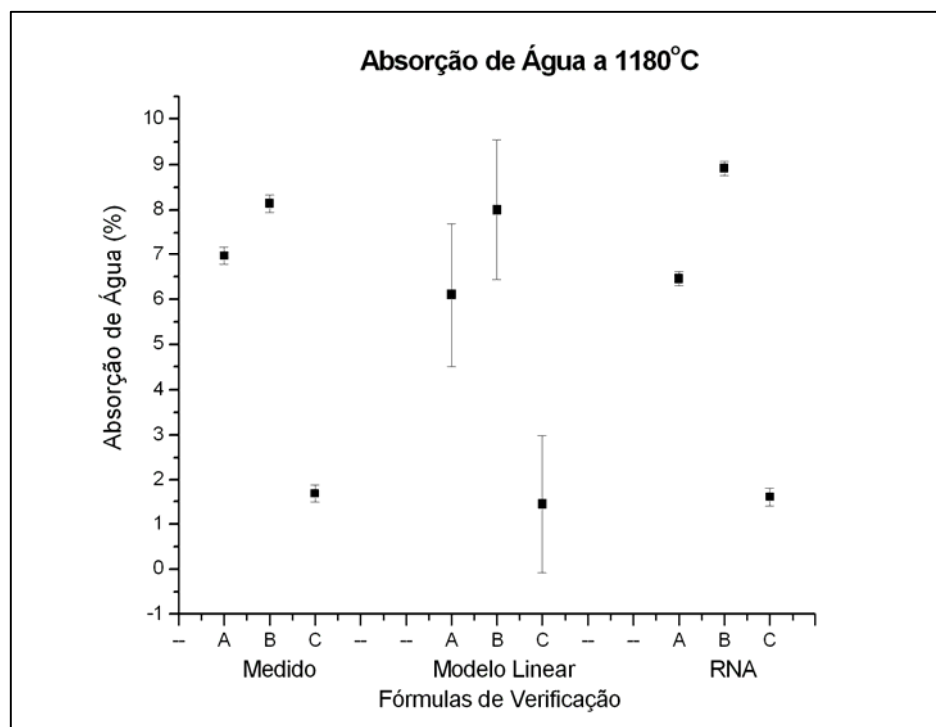


Figura 56 Verificação da capacidade preditiva de absorção de água pós-queima a 1180°C.

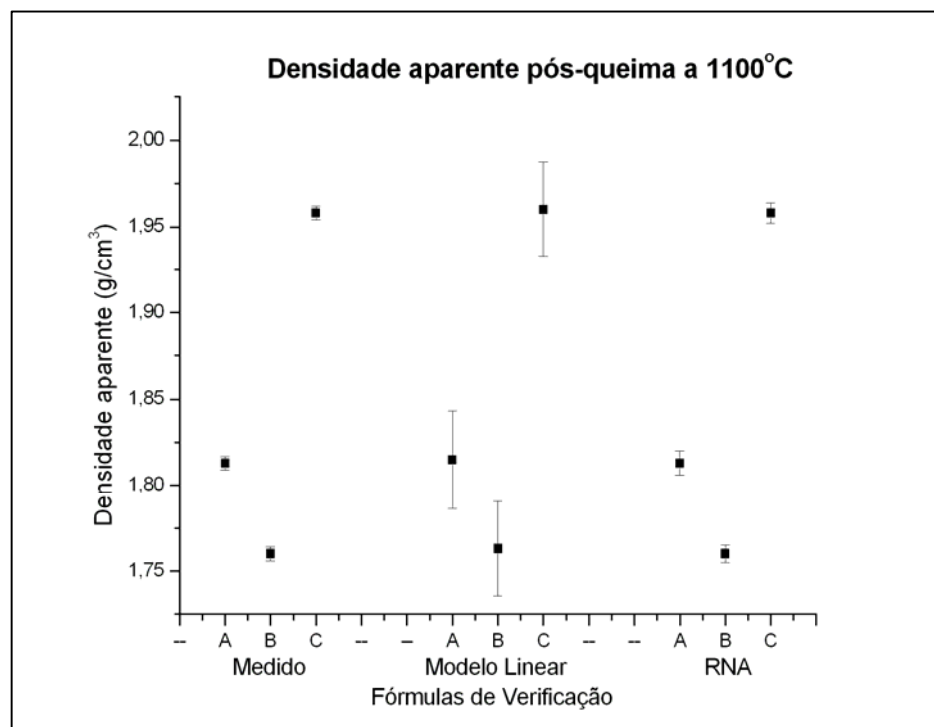


Figura 57 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente pós-queima a 1100°C.

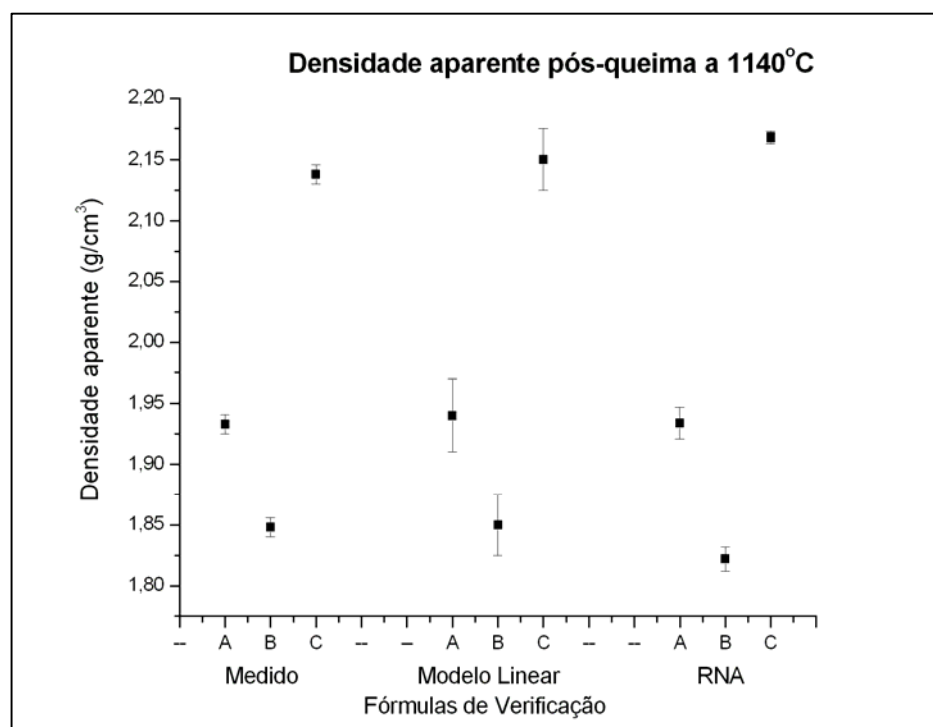


Figura 58 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente pós-queima a 1140°C.

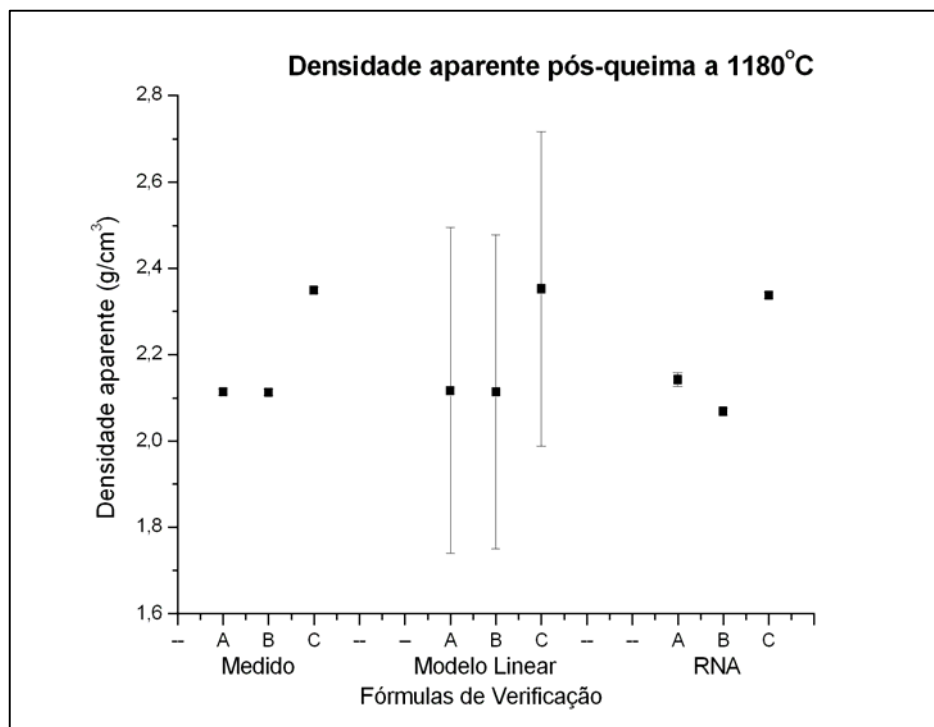


Figura 59 Verificação da capacidade preditiva de densidade aparente pós-queima a 1160°C.

Para todas as propriedades, nota-se que o desvio padrão da previsão do modelo linear é sempre maior que os desvios padrões dos resultados medidos e previstos pelas redes neurais artificiais.

5. CONCLUSÕES

Sobre o emprego de redes neurais artificiais no tratamento de dados de experimentos com misturas de sistemas cerâmicos que sinterizam sob fluxo viscoso, como porcelana para isoladores elétricos e porcelanato, conclui-se:

- Redes neurais são capazes de modelar a relação existente entre teor de matérias-primas e propriedades finais para cerâmicas multicomponentes;
- Sistemas que exibem linearidade podem ser tratados pelo método clássico de regressão linear ou redes neurais. Quando tratados por redes neurais, o desvio padrão de previsão é menor;
- Sistemas que exibem relação de segunda ordem entre teor de matérias-primas e propriedades pós-processamento podem ser tratados com redes neurais ou regressão polinomial. Quando tratados por redes neurais, o desvio padrão de previsão é menor;
- A escolha de pontos experimentais através do projeto de experimento de mistura que visa regressão linear não assegura boa capacidade preditiva para as redes neurais, uma vez que neste tipo de projeto o reduzido número de pontos não é suficiente para determinar um comportamento corretamente, sendo necessária a inclusão de mais pontos experimentais.

De um modo geral, o emprego de redes neurais artificiais aliadas a experimentos planejados com misturas mostra-se eficiente para desenvolvimento de misturas cerâmicas, mesmo que o polinômio que descreve a tendência entre teor de matéria-prima e propriedade em estudo seja linear ou não.

6. SUGESTÕES

No decorrer do desenvolvimento do trabalho de avaliação do emprego de redes neurais ao desenvolvimento de misturas cerâmicas, surgiram frentes de trabalho que necessitam de novos estudos, conforme sugerido abaixo:

- Investigar as reações que ocorrem em elevadas temperaturas, verificando se realmente ocorre falta de linearidade entre teor de matéria-prima e propriedades cerâmicas em função destas reações;
- Desenvolver método baseado em redes neurais artificiais para extrair coeficientes que representem a influência de cada matéria-prima sobre uma determinada propriedade de mistura cerâmica;
- Utilizar redes neurais artificiais para previsão de propriedades anteriores a queima de misturas cerâmicas conformadas por processos diferentes de prensagem uniaxial.

7. REFERÊNCIAS

- 1 CORREIA, S.L. **Desenvolvimento de metodologia de formulação de massas cerâmicas triaxiais utilizando delineamento de misturas e otimização**. Tese de Doutorado, Programa de Pós-graduação em Ciência e Engenharia de Materiais. Florianópolis: Universidade Federal de Santa Catarina, 2003.
- 2 GOMES, C.M.; REIS, J.P.; CORREIA, S.L.; OLIVEIRA, A.P.N.; HOTZA, D. Influência de diferentes tipos de silicato de sódio em composiciones de cerâmicas triaxiais utilizando um planteamiento de diseño de mezclas. Pos – 79. **QUALICER 2004**, Castellón
- 3 BOSCHI, A.O.; ZAUBERAS, R.T. Avaliação de uma metodologia para a formulação de massas para produtos cerâmicos – Parte I. **Cerâmica Industrial**, v.9, n.5/6, p.25-8, 2004.
- 4 SILVA, H.C. **Delineamento de misturas aplicado a formulações cerâmicas multicomponentes**. 2006. Dissertação de Mestrado, Programa de Pós-graduação em Ciência e Engenharia de Materiais. Florianópolis: Universidade Federal de Santa Catarina, 2006.
- 5 LUONG, L.H.S.; SPEDDING, T.A. A neural-network system for predicting machining behaviour. **Journal of Materials Processing Techonology**, v. 52, p. 585-591, 1995.
- 6 ZENG, W.; GUO, J. Computerized prediction of phase diagrams of the eutectic binary systems of nontransition-nontransition metals. **Calphad**, v. 21, n. 3, p. 295 – 300, 1997.
- 7 GUNASEKERA, J.S.; ZHENGJIE, J.; MALAS, J.C.; RABELO, L. Development of a neural network model for a cold rolling process. **Engineering Applications of Artificial Intelligence**, v.11, p. 597 – 603, 1998.
- 8 CHERIAN, R. P.; SMITH, L. N.; MIDHA, P.S. A neural network approach for selection of powder metallurgy materials and process parameters. **Artificial Intelligence in Engineering**, v. 14, p 39-44, 2000.
- 9 SMITH, L.N; GERMAN, R.M.; SMITH, M.L. A neural network approach for inverse problem for selection of powder metallurgy materials. **Journal of Materials Processing Technology**, v. 20, p. 419 – 425, 2002.
- 10 JOSEPH, H.; PREMEK, L.; MARTA, F. Evaluation of chemical equilibria with the use of artificial neural networks. **Polyhedron**, v. 21, p. 1375 1384, 2002.
- 11 ADEL, M. H.; ABDALLA, A.; MOHAMMED, T.H.; AHMAD, T.M. Prediction of density, porosity and hardness in aluminum-copper-based composite materials

using artificial neural network. **Journal of Materials Processing Technology**, 2008.

12 WESSLING, M.; MULDER, M. H. V.; BOS, A.; LINDEN, M. V. D. Modeling the permeability of polymers: a neural network approach. **Journal of Membrane Science**, Abstract, v. 86, n° 1-2, p. 193 – 198, 1994.

13 HUAFANG, N.; DAVID, H. Prediction of copolymer composition drift using artificial neural networks: copolymerization of acrylamide with quaternary ammonium cationic monomers. **Polymer**, v.8, n. 3, p. 667 – 675, 1997.

14 KAVEH, N.S.; ASHRAFIZADEH, S.N.; MOHAMMADI, F. Development of an artificial neural network model for prediction of cell voltage and current efficiency in a chlor-alkali membrane cell. **Chemical Engineering Research and Design**, 2008.

15 MUKHERJEE, A.; SCHMAUDER, S.; RÜHLE, M. Artificial neural networks for predicting the macromechanical behaviour of metal matrix composites. **Acta Metallurgica**, v. 43, n° 11, p. 4083 – 4091, 1995.

16 RAO, H.S.; MUKHERJEE, A. Artificial neural networks for predicting the macromechanical behaviour of ceramic-matrix composites. **Computational Materials Science**, v. 5, p. 307 – 322, 1996.

17 ALTINKOK, N.; KOKER, R. Neural network approach to prediction of bending strength and hardening behaviour of particulate reinforced (Al-Si-Mg)-aluminium matrix composites. **Materials and Design**, v. 25, p. 595 – 602, 2004.

18 KOKER, R.; ALTINKOK, N.; DEMIR, A. Neural network based prediction of mechanical properties of particulate reinforced metal matrix composites using various training algorithms. **Materials and Design**, v. 28, p. 616 – 627, 2007.

19 CHEN, N.; LI, C.; QIN, P. KDPAG expert system applied to materials design and manufacture. **Engineering Applications of Artificial Intelligence**, v. 11, p. 669 – 674, 1998.

20 GUO, D.; WANG, Y.; NAN, C.; LI, L.; XIA, J. Application of artificial neural network technique to the formulation design of dielectric ceramics. **Sensors and Actuators A**, v. 102, p. 93 – 98, 2002.

21 GUO, D.; WANG, Y.; XIA, J.; NAN, C.; WANG, Y. Investigation of BaTiO₃ formulation: an artificial neural network (ANN) method. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 22, p. 1867 – 1872, 2002.

22 GUO, D.; LI, L.; NAN, C.; XIA, J.; GUI, Z. Modeling and analysis of the electrical properties of PZT through neural networks. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 23, p. 2177 – 2181, 2003.

- 23 SCOTT, D. J.; COVENEY, P. V.; KILNER, J. A.; ROSSINY, J. C. H.; ALFORD, N. M. N. Prediction of the functional properties of ceramic materials from composition using artificial neural networks. **Journal of the European Ceramic Society**, v. 27, p. 4425 – 4435, 2007.
- 24 BABIC, J. Z.; LISJAK, D.; CURKOVIC, L.; JAKOVAC, M. Estimation of chemical resistance of dental ceramics by neural network. **Dental Materials**, v. 24, p. 18 – 27, 2008.
- 25 HENKES, V.E.; ONODA, G.Y.; CARTY, W. M. **Science of whitewares**. Ohio: The American Ceramic Society, 1996.
- 26 NORTON, F. H. **Introdução à tecnologia cerâmica**. Tradução de Jefferson Vieira de Souza. São Paulo, Edgard Blücher, Ed. da Universidade de São Paulo, 1973.
- 27 KINGERY, W. D.; BOWEN, H. K.; UHLMANN, D. R. **Introduction to ceramics**. 2.ed. New York: John Wiley & Sons, 1976.
- 28 DODD, A. E. **Dictionary of ceramics**, New Jersey: Littlefield, Adams & Co., 1967.
- 29 REED, J.S.; **Principles of ceramics processing**. 2.ed. New York: John Wiley & Sons, 1995.
- 30 SANTOS, P. S. **Ciência e tecnologia de argilas**. 2.ed. São Paulo: Editora Edgard Blücher, 1989.
- 31 BARBA, A.; BELTRÁN, V.; FELIÚ, C.; GARCÍA, J.; GINÉS, F.; SÁNCHEZ, E.; SANZ, V. **Materias primas para la fabricación de soportes de baldosas cerámicas**. 2.ed. Castellón: Instituto de Tecnología Cerámica – AICE, 2002.
- 32 UNIVERSIDADE FEDERAL DO PARANÁ. Departamento de Arquitetura e Urbanismo. Laboratório do ambiente construído. Materiais. Disponível em <<http://burle.arquit.ufpr.br/~alschmid/materiais/Azulejos-Luz%20Espinoza.pdf>>. Acesso em 23 fevereiro 2008.
- 33 CERÂMICA PORTOBELLO. Coleções 2008. Disponível em <<http://www.portobello.com.br>>. Acesso em 23 fevereiro 2008.
- 34 ISOLADORES SANTANA. Produtos 2008. Disponível em <<http://www.isoladores-santana.com.br>>. Acesso em 23 fevereiro 2008.
- 35 OXFORD. Produtos 2008. Disponível em <www.oxford.ind.br>. Acesso em 23 fevereiro 2008.

- 36 FORTUNA, D. **Ceramic technology: Sanitaryware**. Faenza: Gruppo Editoriale Faenza Editrice, 2000.
- 37 AMERICAN STANDARD. Produtos 2008. Disponível em <<http://www.americanstandard-us.com/>>. Acesso em 23 fevereiro 2008.
- 38 INTERNATIONAL ELECTROTECHNICAL COMMISSION. IEC STANDARD. IEC 672-1. **Specification for ceramic and glass insulating materials. Part 1: Definitions and classification**. 1^a ed. Geneve, 1980.
- 39 INTERNATIONAL ELECTROTECHNICAL COMMISSION. IEC STANDARD. IEC 672-2. **Specifications for ceramic and glass insulating materials. Part 2: Methods of test**. 1^a ed. Geneve, 1980.
- 40 EUROPEAN NETWORK OF NATIONAL CERAMIC LABORATORIES. **Ceramic tiles, The international standards**. Bologna: Ed. Int. CERLabs, 1994.
- 41 ISOLADORES SANTA TEREZINHA. Produtos 2008. Disponível em <<http://www.cst-isoladores.com.br>>. Acesso em 23 fevereiro 2008.
- 42 LIEBERMANN, J.; WOLFGANG, S. Bauxite porcelain: A new high-tech product for high-voltage insulation. **American Ceramic Society Bulletin**, v.81, n^o.2, p. 33 – 38, 2002.
- 43 BIFFI, G. **Gres porcellanato: tecnologia, produzione, mercato**. Faenza: Gruppo Editoriale Faenza Editrice, 1997.
- 44 MONTGOMERY, D.C. **Design and analysis of experiments**. 6.ed. New York: John Wiley & Sons, 2005.
- 45 BOX, G. E. P.; DRAPER, N. R. **Response surfaces, mixtures and ridge analyses**. 2 ed. New Jersey: John Wiley & Sons, 2007.
- 46 DEAN, A.; VOSS, D. **Design and analisys of experiments**. New York: Springer-Verlag New York Inc., 1999.
- 47 ECHIP. Version 7.0. Echip Inc. Hockessin, 1998.
- 48 KOVÁCS, Z. L.; **Redes neurais artificiais: fundamentos e aplicações**. 2. ed. São Paulo: Acadêmica, 1996.
- 49 HYKIN, S. **Redes neurais: princípios e prática**. 2 ed. Porto Alegre, Artmed Editora S.A., 1999.

- 50 COSTA, M. A.; BRAGA, A. P.; MENEZES, B. R. Improving generalizations of MLPs with sliding mode control and the Levenberg-Marquardt Algorithm. **Neurocomputing**. v. 70, p. 1342 – 1347, 2007.
- 51 AMORÓS, J.L.; SÁNCHEZ, E.; GARCÍA-TEM, J.; SANZ,V.; MONZÓ, M. **Manual para el control de la calidad de materias primas arcillosas**. Castellón: Instituto de Tecnología Cerámica – AICE, 1998.
- 52 ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 13818: placas cerâmicas para revestimento – especificação e métodos de ensaios**. Rio de Janeiro: ABNT, 1997.
- 53 SILVA, H.C.; SILVA, N. S.; HOTZA, D. Influência do quartzo na deformação pirolástica de porcelanas triaxiais. **Cerâmica Industrial**. v. 9, n. 5/6, p. 42-46, 2004.
- 54 ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 13817: placas cerâmicas para revestimento – classificação**. Rio de Janeiro: ABNT, 1997.
- 55 NETO, B. B.; SCARMINIO, I. S.; BRUNS, R. E. **Como fazer experimentos**. Campinas: Editora da Unicamp, 2007.
- 56 BOSCHI, A.O.; ZAUBERAS, R.T. Avaliação de uma metodologia para a formulação de massas para produtos cerâmicos – Parte II. **Cerâmica Industrial**, v.10, n.1, p.15-22, 2005.
- 57 CHINELATTO, A.L.; SOUZA, D.P.F. Porcelanas elétricas aluminosas: Parte I – Revisão da literatura. **Cerâmica**, v.50, n. ?, p.62-68, 2004.
- 58 Bhadeshia, H.K.D.H.; Neural networks in materials science. **ISIJ International**, v. 39, nº 10, p. 966-979, 1999.
- 59 QIYE, W. HUAIWU, Z.; PEIXIN, Z. Improved artificial neural network for data analysis and property prediction in slag glass-ceramic, **Journal of the American Ceramic Society**, v. 88, nº7, p. 1765-1769, 2005.